

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM

Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 6:

C07D 239/54, A01N 43/54, C07D 249/12,  
249/16

A1

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 98/39304

(43) Internationales  
Veröffentlichungsdatum:

1. September 1998 (11.09.98)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP98/00972

(22) Internationales Anmeldedatum: 20. Februar 1998 (20.02.98)

(30) Prioritätsdaten:

197 08 928.3

5. März 1997 (05.03.97)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER  
AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen  
(DE).

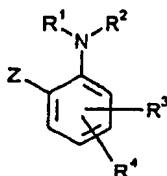
(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): ANDREE, Roland [DE/DE];  
Dechant-Miebach-Weg 37, D-40764 Langenfeld (DE).  
DREWES, Mark, Wilhelm [DE/DE]; Goethestrasse  
38, D-40764 Langenfeld (DE). FINDEISEN, Kurt  
[DE/DE]; Dünfelder Strasse 28, D-51375 Leverkusen  
(DE). KLUTH, Joachim [DE/DE]; Vimeburgstrasse 69,  
D-40764 Langenfeld (DE). LINKER, Karl-Heinz [DE/DE];  
Kurt-Schumacher-Ring 56, D-51377 Leverkusen (DE).  
MÜLLER, Klaus-Helmut [DE/DE]; Solfstrasse 19,  
D-40593 Düsseldorf (DE). SCHALLNER, Otto [DE/DE];  
Noldeweg 22, D-40789 Monheim (DE). DOLLINGER,  
Markus [DE/DE]; Burscheider Strasse 154b, D-51381  
Leverkusen (DE).(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-  
SELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).(81) Bestimmungsstaaten: AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG,  
BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB,  
GE, GH, GM, GW, HU, ID, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR,  
KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN,  
MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK,  
SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW,  
ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW),  
eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ,  
TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI,  
FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent  
(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD,  
TG).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht,  
Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen  
Frist. Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen  
eintreffen.

(54) Title: HETEROCYCLICALLY SUBSTITUTED AROMATIC AMINO COMPOUNDS WITH A HERBICIDAL EFFECT

(54) Bezeichnung: HETEROZYKLISCH SUBSTITUIERTE AROMATISCHE AMINOVERBINDUNGEN MIT HERBIZIDER  
WIRKUNG

(1)

(57) Abstract

New substituted aromatic amino compounds are disclosed having the general formula (I), in which R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> and Z have the meanings given in the description, as well as a process for preparing the same and their use as herbicides.

(57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft neue substituierte aromatische Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (I), in welcher R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup> und Z die in der Beschreibung genannten Bedeutungen haben, ein Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

THIS PAGE IS  
INTENTIONALLY  
BLANK

**LEDIGLICH ZUR INFORMATION**

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LJ	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

WO 98/39304

- 1 -

PCT/EP98/00972

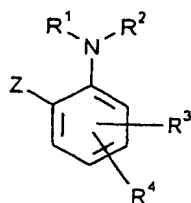
# HETEROYKLISSCH SUBSTITUIERTE AROMATISCHE AMINOVERBINDUNGEN MIT HERBIZIDER WIRKUNG

Die Erfindung betrifft neue substituierte aromatische Aminoverbindungen, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Herbizide.

Einige substituierte aromatische Aminoverbindungen, wie z.B. N-[2-(1,5-Dihydro-1-methyl-5-thioxo-3-trifluormethyl-4H-1,2,4-triazol-4-yl)-5-fluor-phenyl]-benzamid und N-[5-Chlor-2-(1,5-dihydro-1-methyl-5-thioxo-3-trifluormethyl-4H-1,2,4-triazol-4-yl)-phenyl]-acetamid sind bereits aus der Patentliteratur als potentielle Herbizide bekannt geworden (vgl. US 5108486). Diese Verbindungen haben jedoch keine besondere Bedeutung erlangt.

Weitere substituierte aromatische Aminoverbindungen, wie z.B. N-[5-Chlor-2-(2,5-dihydro-3,4-dimethyl-2,5-dioxo-1H-pyrrol-1-yl)-phenyl]-acetamid (vgl. Indian J. Chem, Sect. B, 29B (1990), 659-660 - zitiert in Chem. Abstracts 113:211906), sowie N-[2-(5-diethylamino-3-t-butyl-1H-1,2,4-triazol-1-yl)-5-trifluormethyl-phenyl]-2,2-dimethyl-propanamid und N-[2-(5-diethylamino-3-t-butyl-1H-1,2,4-triazol-1-yl)-5-trifluormethyl-phenyl]-acetamid (vgl. JP 02091062 - zitiert in Chem. Abstracts 113:97612) sind ebenfalls bereits bekannt. Über eine herbizide Wirksamkeit dieser Verbindungen ist jedoch nichts bekannt geworden.

Es wurden nun neue substituierte aromatische Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (I),



(I)

in welcher

WO 98/39304

- 2 -

PCT/EP98/00972

- 5  
10  
15  
20  
25  
30
- R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Alkyl, Alkoxy, Alkylamino oder Dialkylamino, oder für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,  
  
-CQ<sup>1</sup>-R<sup>5</sup>, -CQ<sup>1</sup>-Q<sup>2</sup>-R<sup>6</sup>, -S(O)<sub>n</sub>-R<sup>7</sup>,
- R<sup>2</sup> für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,  
  
-CQ<sup>1</sup>-R<sup>5</sup>, -CQ<sup>1</sup>-Q<sup>2</sup>-R<sup>6</sup>, -S(O)<sub>n</sub>-R<sup>7</sup>,
- R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Nitro, Halogen, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkoxycarbonyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl, oder für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,  
  
-SO<sub>2</sub>-NH-R<sup>5</sup>, -NH-SO<sub>2</sub>-R<sup>7</sup>, -N(SO<sub>2</sub>-R<sup>7</sup>)<sub>2</sub>, -N(SO<sub>2</sub>-R<sup>7</sup>)(CO-R<sup>5</sup>),
- R<sup>4</sup> für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Nitro, Halogen, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkoxycarbonyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl, oder für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,  
  
-SO<sub>2</sub>-NH-R<sup>5</sup>, -NH-SO<sub>2</sub>-R<sup>7</sup>, -N(SO<sub>2</sub>-R<sup>7</sup>)<sub>2</sub>, -N(SO<sub>2</sub>-R<sup>7</sup>)(CO-R<sup>5</sup>),
- n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,
- Q<sup>1</sup> für O oder S steht und
- Q<sup>2</sup> für O, S, NH oder N-Alkyl steht,
- R<sup>5</sup> für Wasserstoff oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Aryl, Arylalkyl oder Heterocyclyl steht,

WO 98/39304

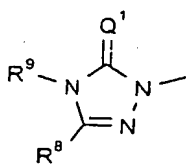
- 3 -

PCT/EP98/00972

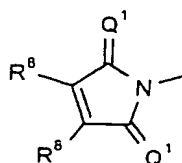
R<sup>6</sup> für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Aryl oder Arylalkyl steht,

R<sup>7</sup> für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Aryl, Arylalkyl oder Heterocyclyl steht, und

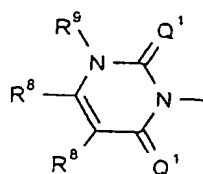
Z für eine der nachstehenden heterocyclischen Gruppierungen steht.



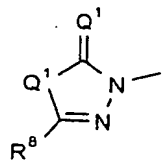
(Z¹)



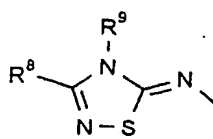
(Z²)



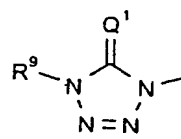
(Z³)



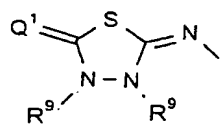
(Z⁴)



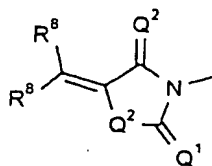
(Z⁵)



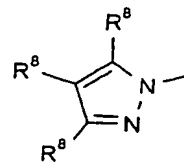
(Z⁶)



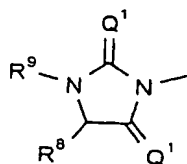
(Z⁷)



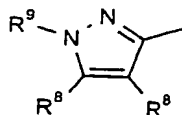
(Z⁸)



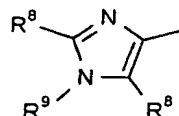
(Z⁹)



(Z¹⁰)



(Z¹¹)

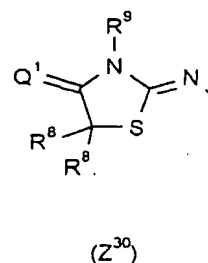
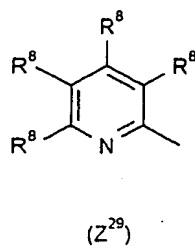
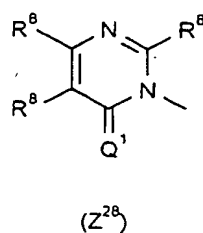
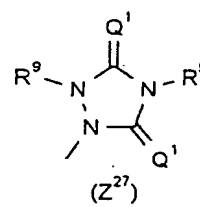
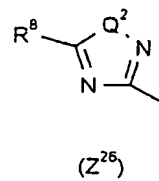
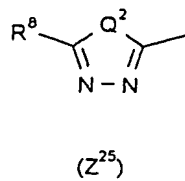
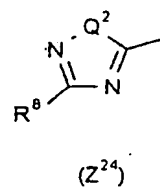
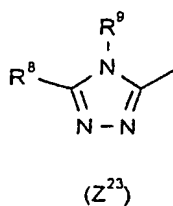
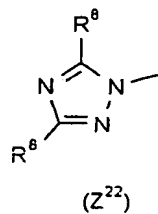
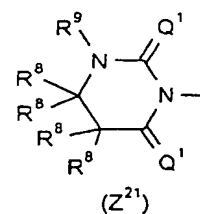
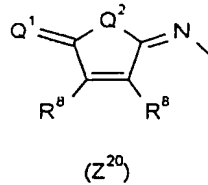
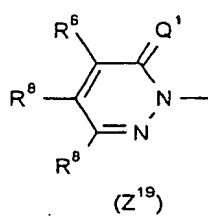
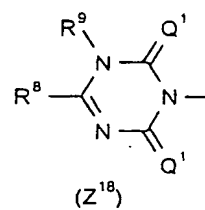
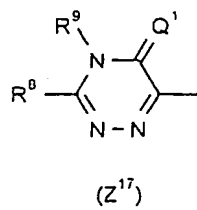
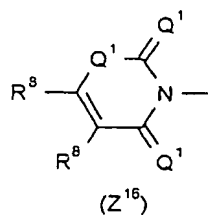
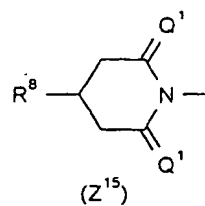
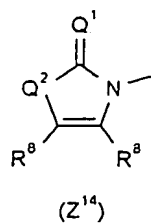
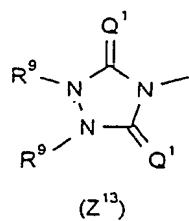


(Z¹²)

WO 98/39304

PCT/EP98/00972

- 4 -

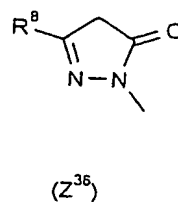
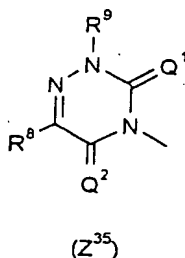
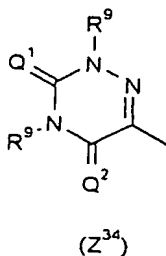
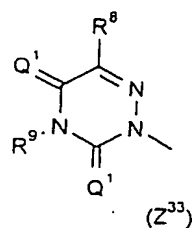
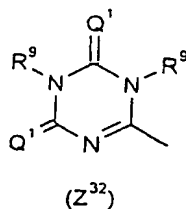
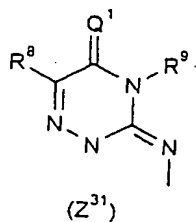


5

WO 98/39304

- 5 -

PCT/EP98/00972



wobei jeweils

Q<sup>1</sup> und Q<sup>2</sup> die oben angegebene Bedeutung haben,

R<sup>8</sup> für Wasserstoff, Amino, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thio-carbamoyl, Halogen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkoxy-carbonyl, Alkenyloxy, Alkinyl-oxy, Alkylthio, Alkenylthio, Alkinylthio, Alkylamino, Dialkylamino, Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl steht, und

R<sup>9</sup> für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Cyano, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy-carbonyl, Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Phenyl oder Phenylalkyl steht,

wobei gegebenenfalls zwei benachbarte Reste - R<sup>8</sup> und R<sup>8</sup>, R<sup>9</sup> und R<sup>9</sup> oder R<sup>8</sup> und R<sup>9</sup> - zusammen für Alkandiyl (Alkylen) oder Oxaalkandiyl stehen, und

wobei die einzelnen Reste R<sup>8</sup> und R<sup>9</sup> - soweit sie mehr als einmal in der gleichen heterocyclischen Gruppierung stehen, die gleiche oder

WO 98/39304

PCT/EP98/00972

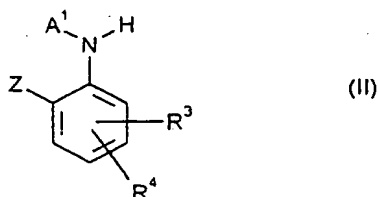
- 6 -

verschiedene Bedeutungen im Rahmen der obigen Definition haben können,

mit Ausnahme der vorbekannten Verbindung N-[5-Chlor-2-(2,5-dihydro-3,4-dimethyl-2,5-dioxo-1H-pyrrol-1-yl)-phenyl]-acetamid (vgl. Indian J. Chem, Sect. B, 29B (1990), 659-660 - zitiert in Chem. Abstracts 113:211906), und der ebenfalls vorbekannten Verbindungen N-[2-(5-diethylamino-3-t-butyl-1H-1,2,4-triazol-1-yl)-5-trifluormethyl-phenyl]-2,2-dimethyl-propanamid und N-[2-(5-diethylamino-3-t-butyl-1H-1,2,4-triazol-1-yl)-5-trifluormethyl-phenyl]-acetamid (vgl. JP 02091062 - zitiert in Chem. Abstracts 113:97612)

gefunden.

Man erhält die neuen substituierten aromatischen Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (I), wenn man aromatische Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (II),



in welcher

R³, R⁴ und Z die oben angegebene Bedeutung haben und

A¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Alkyl, Alkoxy, Alkylamino oder Dialkylamino steht,

mit elektrophilen Verbindungen der allgemeinen Formel (III),





WO 98/39304

- 7 -

PCT/EP98/00972

in welcher

$R^2$  die oben angegebene Bedeutung hat und

5 X für Halogen steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säureakzeptors und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, umgesetzt

10 und die auf diese Weise erhaltenen Verbindungen der allgemeinen Formel (I), gegebenenfalls nach üblichen Methoden, in andere Verbindungen der allgemeinen Formel (I) gemäß der obigen Definition umwandelt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

15 Die neuen substituierten aromatischen Aminoverbindungen der allgemeinen Formel zeichnen sich durch starke und selektive herbizide Wirksamkeit aus.

20 In den Definitionen sind die gesättigten oder ungesättigten Kohlenwasserstoffketten, wie Alkyl, Alkandiy, Alkenyl oder Alkynyl - auch in Verbindung mit Heteroatomen, wie in Alkoxy, Alkylthio oder Alkylamino - jeweils geradkettig oder verzweigt.

Halogen steht im allgemeinen für Fluor, Chlor, Brom oder Iod, vorzugsweise für Fluor, Chlor oder Brom, insbesondere für Fluor oder Chlor.

25 Gegenstand der Erfindung sind vorzugsweise Verbindungen der Formel (I),

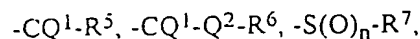
in welcher

30  $R^1$  für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, für Alkyl, Alkoxy, Alkylamino oder Di-alkylamino mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, oder für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,

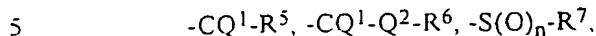
WO 98/39304

- 8 -

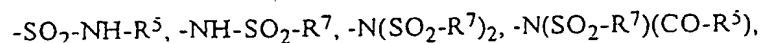
PCT/EP98/00972



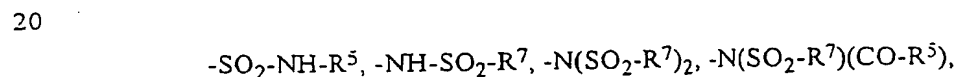
$R^2$  für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,



10  $R^3$  für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thio-carbamoyl, Nitro, Halogen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkoxycarbonyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, oder für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,



15  $R^4$  für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thio-carbamoyl, Nitro, Halogen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkoxycarbonyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkylgruppen, oder für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,



$n$  für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

25  $Q^1$  für O oder S steht und

$Q^2$  für O, S, NH oder N-Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht,

30  $R^5$  für Wasserstoff, für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in der Cycloalkylgruppe und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für jeweils ge-

WO 98/39304

- 9 -

PCT/EP98/00972

5 gegebenenfalls durch Cyano, Nitro, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy substituiertes Aryl oder Arylalkyl mit 6 oder 10 Kohlenstoffatomen in der Arylgruppe und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, oder für gegebenenfalls durch Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy substituiertes Heterocyclyl steht, wobei als Heterocyclylgruppen Furyl, Tetrahydrofuryl, Thienyl, Pyridyl und Pyrimidinyl bevorzugt sind,

10 R<sup>6</sup> für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl oder Alkynyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in der  
15 Cycloalkylgruppe und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Nitro, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy substituiertes Aryl oder Arylalkyl mit 6 oder 10 Kohlenstoffatomen in der Arylgruppe und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil steht,

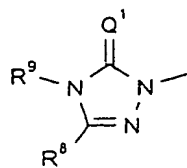
20 R<sup>7</sup> für gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in der Cycloalkylgruppe und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für jeweils  
25 gegebenenfalls durch Cyano, Nitro, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-carbonyl substituiertes Aryl oder Arylalkyl mit 6 oder 10 Kohlenstoffatomen in der Arylgruppe und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, oder für gegebenenfalls  
30 durch Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy substituiertes Heterocyclyl steht, wobei als Heterocyclylgruppen Pyridyl und Pyrimidinyl bevorzugt sind, und

WO 98/39304

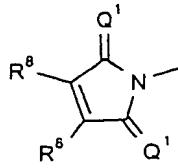
- 10 -

PCT/EP98/00972

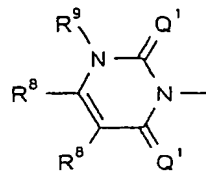
Z für eine der nachstehenden heterocyclischen Gruppierungen steht.



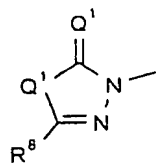
(Z¹)



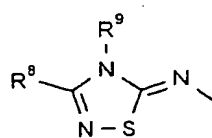
(Z²)



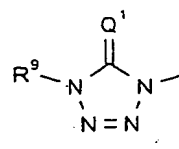
(Z³)



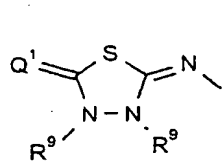
(Z⁴)



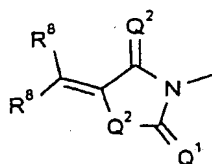
(Z⁵)



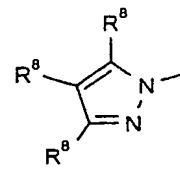
(Z⁶)



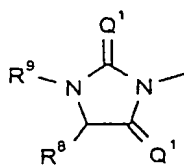
(Z⁷)



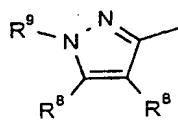
(Z⁸)



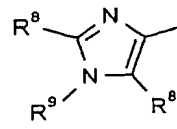
(Z⁹)



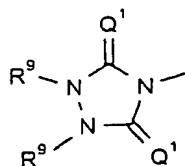
(Z¹⁰)



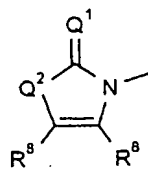
(Z¹¹)



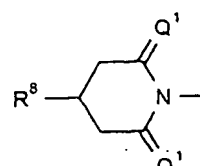
(Z¹²)



(Z¹³)



(Z¹⁴)



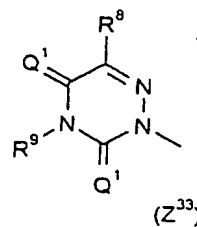
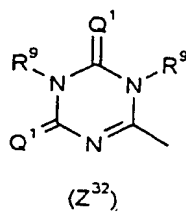
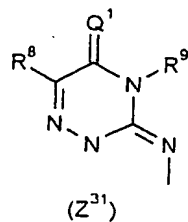
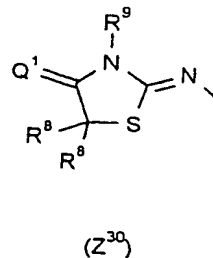
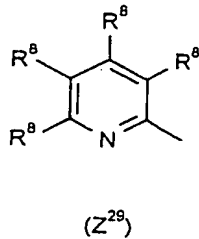
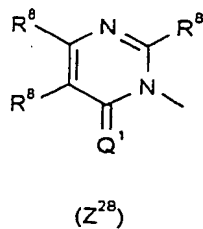
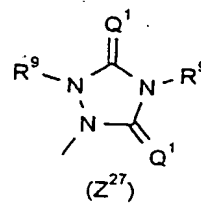
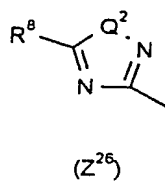
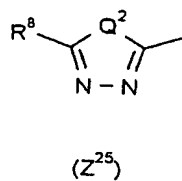
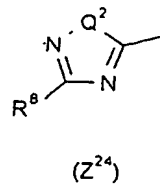
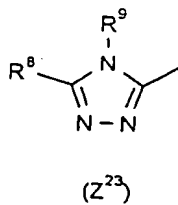
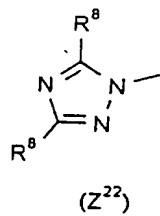
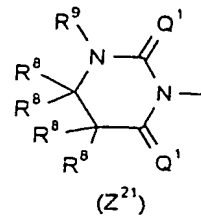
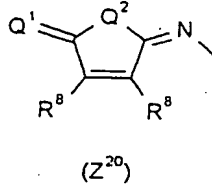
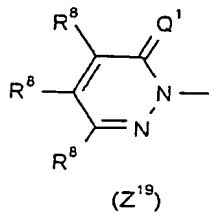
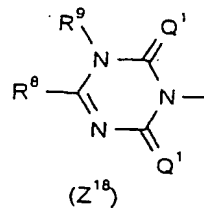
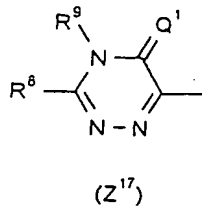
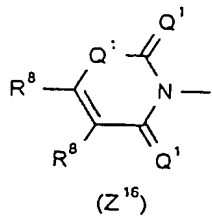
(Z¹⁵)

10

WO 98/39304

- 11 -

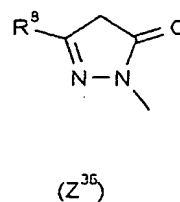
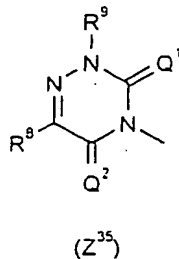
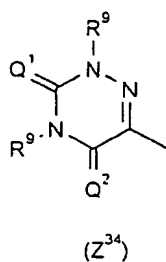
PCT/EP98/00972



WO 98/39304

- 12 -

PCT/EP98/00972



wobei jeweils

5

Q<sup>1</sup> und Q<sup>2</sup> die oben angegebene Bedeutung haben,

10

15

20

25

R<sup>8</sup> für Wasserstoff, Amino, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thio-  
 carbamoyl, Halogen, für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für  
 jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl oder  
 Alkynyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils gegebenen-  
 falls durch Cyano, Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Alkoxy  
 oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den  
 Alkylgruppen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes  
 Alkenyloxy oder Alkynyloxy mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen, für  
 gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy sub-  
 stituiertes Alkylthio mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils ge-  
 gebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenylthio oder Alkynylthio  
 mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils gegebenenfalls durch  
 Cyano, Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Alkylamino oder  
 Dialkylamino mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Alkyl-  
 gruppen, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder  
 C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils  
 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Cycloalkylgruppen und gegebenen-  
 falls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil steht, und

WO 98/39304

- 13 -

PCT/EP98/00972

R<sup>9</sup> für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Cyano, für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils gegebenenfalls durch Halogen substituiertes Alkenyl oder Alkinyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, für gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy substituiertes Alkoxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl substituiertes Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen in den Cycloalkylgruppen und gegebenenfalls 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Nitro, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy und/oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy substituiertes Phenyl oder Phenyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl steht,

wobei gegebenenfalls zwei benachbarte Reste - R<sup>8</sup> und R<sup>8</sup>, R<sup>9</sup> und R<sup>9</sup> oder R<sup>8</sup> und R<sup>9</sup> - zusammen für Alkandiyl (Alkylen) oder Oxaalkandiyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen stehen, und

wobei die einzelnen Reste R<sup>8</sup> und R<sup>9</sup> - soweit sie mehr als einmal in der gleichen heterocyclischen Gruppierung stehen, die gleiche oder verschiedene Bedeutungen im Rahmen der obigen Definition haben können,

mit Ausnahme der vorbekannten Verbindung N-[5-Chlor-2-(2,5-dihydro-3,4-dimethyl-2,5-dioxo-1H-pyrrol-1-yl)-phenyl]-acetamid (vgl. Indian J. Chem. Sect. B, 29B (1990), 659-660 - zitiert in Chem. Abstracts 113:211906), und der ebenfalls vorbekannten Verbindungen N-[2-(5-diethylamino-3-t-butyl-1H-1,2,4-triazol-1-yl)-5-trifluormethyl-phenyl]-2,2-dimethyl-propanamid und N-[2-(5-diethylamino-3-t-butyl-1H-1,2,4-triazol-1-yl)-5-trifluormethyl-phenyl]-acetamid (vgl. JP 02091062 - zitiert in Chem. Abstracts 113:97612).

Gegenstand der Erfindung sind insbesondere Verbindungen der Formel (I),

in welcher

- 5       $R^1$       für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, für Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propylamino, n-, i-, s- oder t-Butylamino oder Dimethylamino, oder für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,
- $-CQ^1-R^5$ ,  $-CQ^1-Q^2-R^6$ ,  $-S(O)_n-R^7$ ,
- 10       $R^2$       für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,
- $-CQ^1-R^5$ ,  $-CQ^1-Q^2-R^6$ ,  $-S(O)_n-R^7$ ,
- 15       $R^3$       für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thio-carbamoyl, Nitro, Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, 20 Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl, oder für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,
- $-SO_2-NH-R^5$ ,  $-NH-SO_2-R^7$ ,  $-N(SO_2-R^7)_2$ ,  $-N(SO_2-R^7)(CO-R^5)$ ,
- 25       $R^4$       für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thio-carbamoyl, Nitro, Fluor, Chlor, Brom, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, 30 Methylsulfonyl oder Ethylsulfonyl, oder für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,



WO 98/39304

- 15 -

PCT/EP98/00972

$-\text{SO}_2-\text{NH}-\text{R}^5$ ,  $-\text{NH}-\text{SO}_2-\text{R}^7$ ,  $-\text{N}(\text{SO}_2-\text{R}^7)_2$ ,  $-\text{N}(\text{SO}_2-\text{R}^7)(\text{CO}-\text{R}^5)$ ,

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

5 Q<sup>1</sup> für O oder S steht und

Q<sup>2</sup> für O, S, NH oder N-Methyl steht,

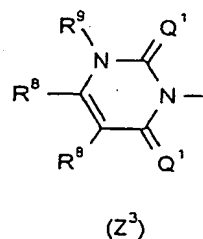
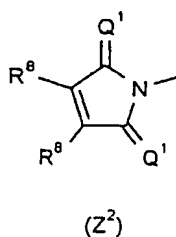
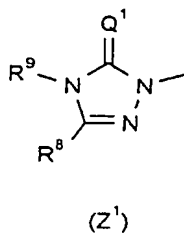
10 R<sup>5</sup> für Wasserstoff, für gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl oder Cyclohexylmethyl, für jeweils gegebenenfalls  
15 durch Cyano, Nitro, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenyl oder Benzyl, oder für gegebenenfalls  
20 durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Furyl, Tetrahydrofuryl, Thienyl oder Pyridyl steht,

25 R<sup>6</sup> für gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Propenyl, Butenyl, Propinyl oder Butinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl oder Cyclohexylmethyl, oder für  
30 jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Nitro, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Trifluormethyl,

Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Phenyl oder Benzyl steht,

R<sup>7</sup> für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl oder Cyclohexylmethyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Nitro, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-Butylthio, Methylsulfinyl, Ethylsulfinyl, Methylsulfonyl, Ethylsulfonyl, Methoxycarbonyl oder Ethoxy-carbonyl substituiertes Phenyl oder Benzyl, oder für gegebenenfalls durch Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy oder Trifluormethoxy substituiertes Pyridyl oder Pyrimidinyl steht und

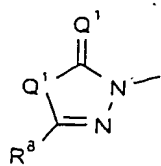
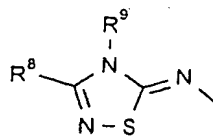
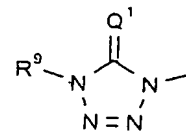
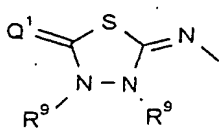
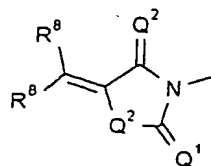
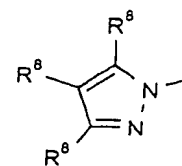
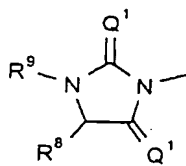
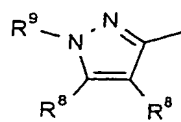
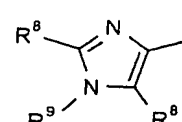
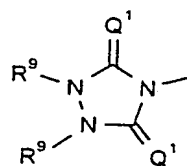
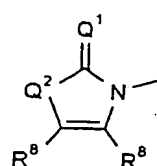
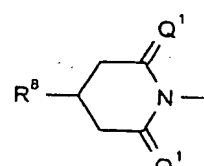
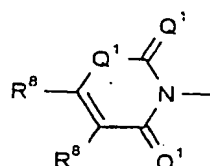
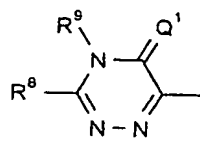
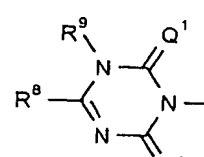
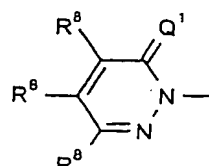
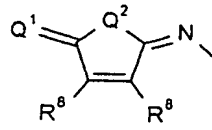
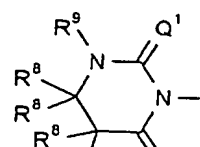
Z für eine der nachstehenden heterocyclischen Gruppierungen steht.



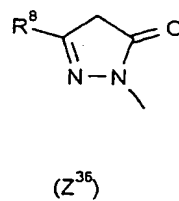
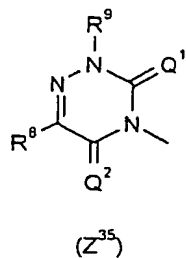
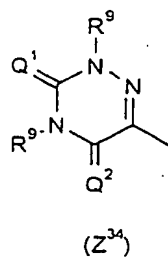
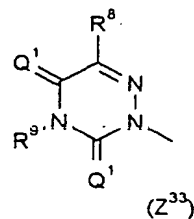
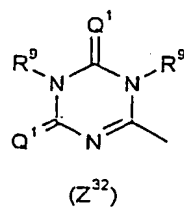
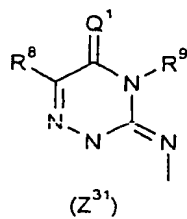
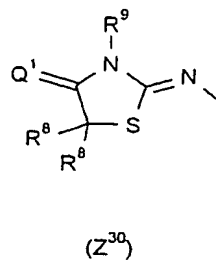
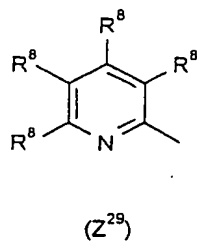
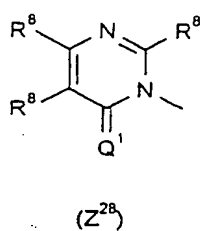
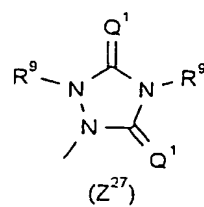
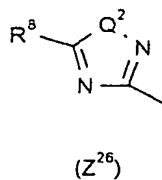
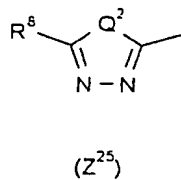
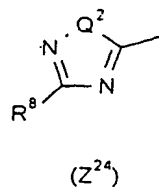
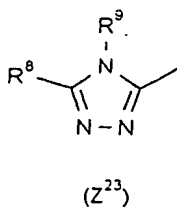
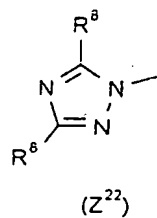
WO 98/39304

- 17 -

PCT/EP98/00972

(Z<sup>4</sup>)(Z<sup>5</sup>)(Z<sup>6</sup>)(Z<sup>7</sup>)(Z<sup>8</sup>)(Z<sup>9</sup>)(Z<sup>10</sup>)(Z<sup>11</sup>)(Z<sup>12</sup>)(Z<sup>13</sup>)(Z<sup>14</sup>)(Z<sup>15</sup>)(Z<sup>16</sup>)(Z<sup>17</sup>)(Z<sup>18</sup>)(Z<sup>19</sup>)(Z<sup>20</sup>)(Z<sup>21</sup>)

5



wobei jeweils

Q<sup>1</sup> und Q<sup>2</sup> die oben angegebene Bedeutung haben,

WO 98/39304

- 19 -

PCT/EP98/00972

- 5  
10  
15  
20  
25  
30
- R<sup>8</sup> für Wasserstoff, Amino, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thio-  
carbamoyl, Fluor, Chlor, Brom, für gegebenenfalls durch Cyano, Fluor,  
Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl, Ethyl, n- oder i-  
Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor,  
Chlor oder Brom substituiertes Propenyl, Butenyl, Propinyl oder  
Butinyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor,  
Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methoxy, Ethoxy, n- oder i-  
Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Methoxycarbonyl oder Ethoxy-  
carbonyl, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substituier-  
tes Propenyloxy, Butenyloxy, Propinyloxy oder Butinyloxy, für gege-  
benenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy sub-  
stituiertes Methylthio, Ethylthio, n- oder i-Propylthio, n-, i-, s- oder t-  
Butylthio, für jeweils gegebenenfalls durch Fluor oder Chlor substitu-  
iertes Propenylthio, Butenylthio, Propinylthio oder Butinylthio, für  
jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder  
Ethoxy substituiertes Methylamino, Ethylamino, n- oder i-Propyl-  
amino, n-, i-, s- oder t-Butylamino, Dimethylamino oder Diethylamino,  
oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom,  
Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl,  
Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl  
oder Cyclohexylmethyl steht, und
- R<sup>9</sup> für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Cyano, für gegebenenfalls durch  
Cyano, Fluor, Chlor, Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methyl,  
Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s- oder t-Butyl, für jeweils gegebenen-  
falls durch Fluor, Chlor oder Brom substituiertes Propenyl, Butenyl,  
Propinyl oder Butinyl, für gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor,  
Methoxy oder Ethoxy substituiertes Methoxycarbonyl oder Ethoxy-  
carbonyl, für jeweils gegebenenfalls durch Cyano, Fluor, Chlor, Brom,  
Methyl oder Ethyl substituiertes Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl,  
Cyclohexyl, Cyclopropylmethyl, Cyclobutylmethyl, Cyclopentylmethyl  
oder Cyclohexylmethyl, oder für jeweils gegebenenfalls durch Cyano,  
Nitro, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n- oder i-Propyl, n-, i-, s-

oder t-Butyl, Trifluormethyl, Methoxy, Ethoxy, n- oder i-Propoxy, n-, i-, s- oder t-Butoxy, Difluormethoxy und/oder Trifluormethoxy substituiertes Phenyl oder Benzyl steht,

5 wobei gegebenenfalls zwei benachbarte Reste -  $R^8$  und  $R^8$ ,  $R^9$  und  $R^9$  oder  $R^8$  und  $R^9$  - zusammen für Ethan-1,2-diyl (Dimethylen), Propan-1,3-diyl (Trimethylen), Butan-1,4-diyl (Tetramethylen) oder 1-Oxabutan-1,4-diyl stehen, und

10 wobei die einzelnen Reste  $R^8$  und  $R^9$  - soweit sie mehr als einmal in der gleichen heterocyclischen Gruppierung stehen, die gleiche oder verschiedene Bedeutungen im Rahmen der obigen Definition haben können,

15 mit Ausnahme der vorbekannten Verbindung N-[5-Chlor-2-(2,5-dihydro-3,4-dimethyl-2,5-dioxo-1H-pyrrol-1-yl)-phenyl]-acetamid (vgl. Indian J. Chem, Sect. B, 29B (1990), 659-660 - zitiert in Chem. Abstracts 113:211906), und der ebenfalls vorbekannten Verbindungen N-[2-(5-diethylamino-3-t-butyl-1H-1,2,4-triazol-1-yl)-5-trifluormethyl-phenyl]-2,2-dimethyl-propanamid und N-[2-(5-diethylamino-3-t-butyl-20 1H-1,2,4-triazol-1-yl)-5-trifluormethyl-phenyl]-acetamid (vgl. JP 02091062 - zitiert in Chem. Abstracts 113:97612).

Ganz besonders bevorzugt sind diejenigen Verbindungen der Formel (I),

25 bei welchen

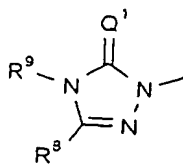
$R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$ , n,  $Q^1$ ,  $Q^2$ ,  $R^5$ ,  $R^6$  und  $R^7$  die oben als insbesondere bevorzugt angegebenen Bedeutungen haben und

30 Z für eine der nachstehenden heterocyclischen Gruppierungen steht.

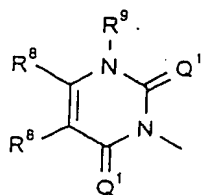
WO 98/39304

- 21 -

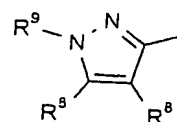
PCT/EP98/00972



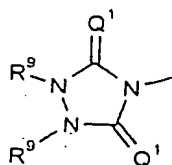
(Z¹)



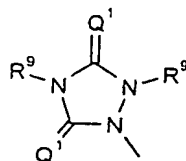
(Z³)



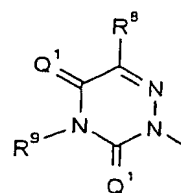
(Z¹¹)



(Z¹³)



(Z²⁷)



(Z³³)

5

wobei jeweils

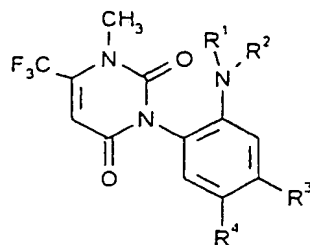
Q¹, Q², R⁸ und R⁹ die oben als insbesondere bevorzugt angegebenen Bedeutungen haben.

10

Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen gelten sowohl für die Endprodukte der Formel (I) als auch entsprechend für die jeweils zur Herstellung benötigten Ausgangs- oder Zwischenprodukte. Diese Restdefinitionen können untereinander, also auch zwischen den angegebenen bevorzugten Bereichen beliebig kombiniert werden.

15

Beispiele für die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) sind in den nachstehenden Gruppen aufgeführt.

Gruppe 1

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> haben dabei die in der nachstehenden Auflistung angegebenen Bedeutungen:

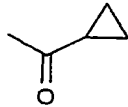
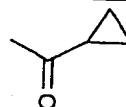
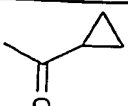
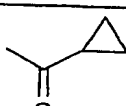
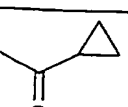



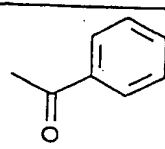
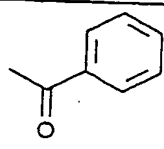
R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>
H	-CO-CH <sub>3</sub>	H	H	H	-CO-CH <sub>3</sub>	H	Cl
H	-CO-CH <sub>3</sub>	F	H	H	-CO-CH <sub>3</sub>	Br	H
H	-CO-CH <sub>3</sub>	Cl	H	H	-CO-CH <sub>3</sub>	CN	H
H	-CO-CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	-CO-CH <sub>3</sub>	CF <sub>3</sub>	H
H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	Cl
H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	F	H	H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	Br	H
H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	Cl	H	H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CN	H
H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CF <sub>3</sub>	H
H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-n</sub>	H	H	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-n</sub>	H	Cl
H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-n</sub>	F	H	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-n</sub>	Br	H
H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-n</sub>	Cl	H	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-n</sub>	CN	H
H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-n</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-n</sub>	CF <sub>3</sub>	H
H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-i</sub>	H	H	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-i</sub>	H	Cl
H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-i</sub>	F	H	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-i</sub>	Br	H
H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-i</sub>	Cl	H	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-i</sub>	CN	H
H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-i</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-i</sub>	CF <sub>3</sub>	H
H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-i</sub>	OCH <sub>3</sub>	H	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-i</sub>	Cl	Cl
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9-n</sub>	H	H	H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9-n</sub>	H	Cl
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9-n</sub>	F	H	H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9-n</sub>	Br	H
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9-n</sub>	Cl	H	H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9-n</sub>	CN	H

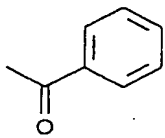
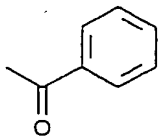
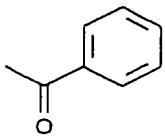
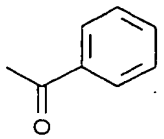
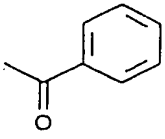
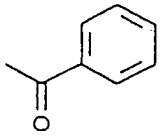


WO 98/39304

- 23 -

PCT/EP98/00972

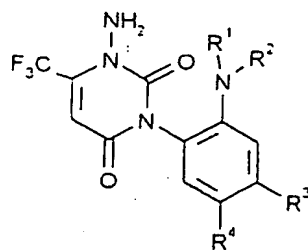
R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>		R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -n	CH <sub>3</sub>	H		H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -n	CF <sub>3</sub>	H
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -i	H	H		H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -i	H	Cl
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -i	F	H		H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -i	Br	H
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -i	Cl	H		H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -i	CN	H
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -i	CH <sub>3</sub>	H		H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -i	CF <sub>3</sub>	H
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -s	H	H		H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -s	H	Cl
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -s	Cl	H		H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -s	Br	H
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -s	CH <sub>3</sub>	H		H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -s	CF <sub>3</sub>	H
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -s	F	H		H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -s	CN	H
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	H	H		H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	H	Cl
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	F	H		H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	Br	H
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	Cl	H		H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	CN	H
H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	CH <sub>3</sub>	H		H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	CF <sub>3</sub>	H
H		H	H		H		H	Cl
H		F	H		H		Br	H
H		Cl	H		H		CN	H
H		CH <sub>3</sub>	H		H		CF <sub>3</sub>	H
H		H	H		H		H	Cl

R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>		R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>
H		F	H		H		Br	H
H		Cl	H		H		CN	H
H		CH <sub>3</sub>	H		H		CF <sub>3</sub>	H

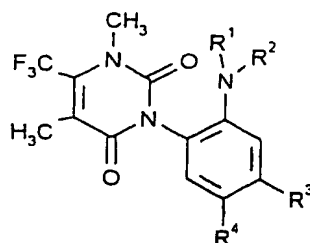
WO 98/39304

- 25 -

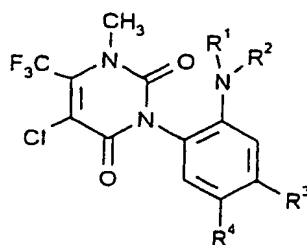
PCT/EP98/00972

Gruppe 2

5 R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> haben hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

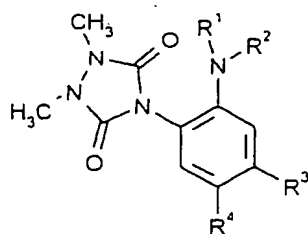
Gruppe 3

10 R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> haben hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

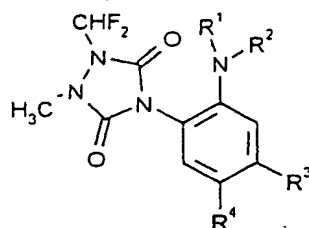
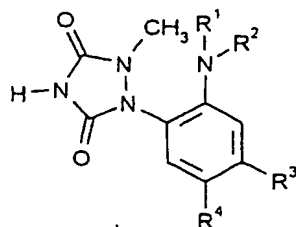
Gruppe 4

15

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> haben hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.



### Gruppe 6

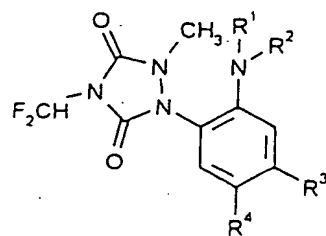
Gruppe 7

15  $R^1, R^2, R^3$  und  $R^4$  haben hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

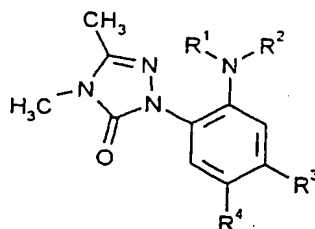
WO 98/39304

- 27 -

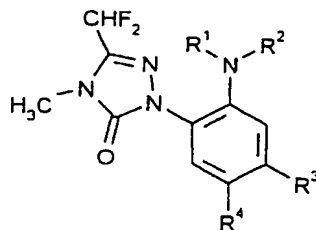
PCT/EP98/00972

Gruppe 8

5 R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> haben hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

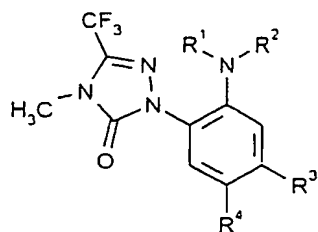
Gruppe 9

10 R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> haben hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

Gruppe 10

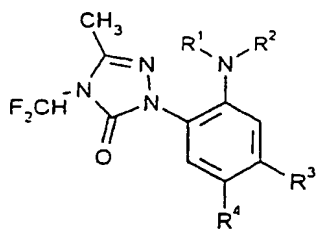
15

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> haben hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

Gruppe 11

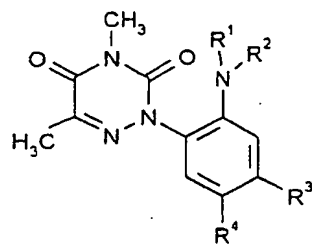
5

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> haben hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

Gruppe 12

10

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> haben hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

Gruppe 13

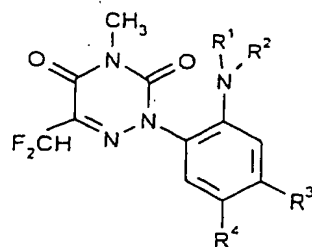
15

R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> haben hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

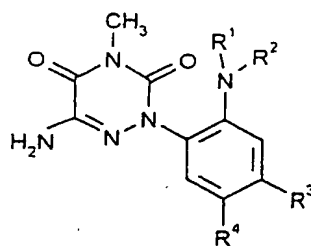
WO 98/39304

- 29 -

PCT/EP98/00972

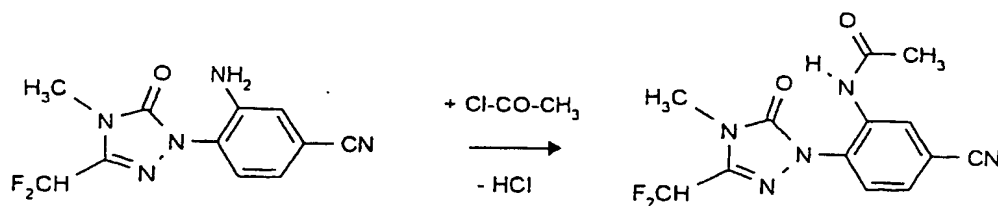
Gruppe 14

5  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  haben hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

Gruppe 15

10  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  haben hierbei beispielhaft die oben in Gruppe 1 angegebenen Bedeutungen.

Verwendet man beispielsweise 2-(2-Amino-4-cyano-phenyl)-4-methyl-5-difluoromethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on und Acetylchlorid als Ausgangsstoffe, so  
 15 kann der Reaktionsablauf beim erfindungsgemäßen Verfahren durch das folgende Formelschema skizziert werden:



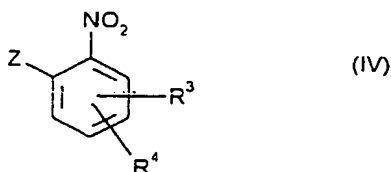
Die beim erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) als Ausgangsstoffe zu verwendenden aromatischen Aminoverbindungen sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In der Formel (II) haben  $R^3$ ,  $R^4$  und Z vorzugsweise bzw. insbesondere diejenigen Bedeutungen, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für  $R^3$ ,  $R^4$  und Z angegeben wurden;  $A^1$  steht vorzugsweise für Wasserstoff, Hydroxy, Amino,  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_6$ -Alkoxy,  $C_1$ - $C_6$ -Alkylamino oder Di-( $C_1$ - $C_6$ -alkyl)-amino, insbesondere für Wasserstoff oder Methyl.

10

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (II) sind noch nicht aus der Literatur bekannt; sie sind als neue Stoffe auch Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

15

Man erhält die neuen aromatischen Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (II), wenn man aromatische Nitroverbindungen der allgemeinen Formel (IV),



20

in welcher

$R^3$ ,  $R^4$  und Z die oben angegebene Bedeutung haben,

25

mit Reduktionsmitteln, wie z.B. mit Wasserstoff in Gegenwart eines Katalysators, wie z.B. Raney-Nickel, oder mit Zinn(II)-chlorid-Dihydrat, oder mit Eisen in Gegenwart einer Säure, wie z.B. Salzsäure, jeweils in Gegenwart eines Verdünnungsmittels, wie z.B. Wasser, Methanol oder Ethanol, bei Temperaturen zwischen  $0^\circ C$  und  $120^\circ C$  umgesetzt (vgl. die Herstellungsbeispiele).



WO 98/39304

- 31 -

PCT/EP98/00972

Die als Vorprodukte benötigten aromatischen Nitroverbindungen der allgemeinen Formel (IV) sind bekannt und/oder können nach bekannten Verfahren hergestellt werden (vgl. US 3489761, DE 2413938, GB 2123420, US 4496390, WO 8702357, EP 617026, Herstellungsbeispiele).

Die beim erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden elektrophilen Verbindungen sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In der Formel (III) hat  $R^2$  vorzugsweise bzw. insbesondere diejenige Bedeutung, die bereits oben im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) vorzugsweise bzw. als insbesondere bevorzugt für  $R^2$  angegeben wurde; X steht vorzugsweise für Fluor, Chlor, Brom oder Iod, insbesondere für Chlor oder Brom.

Die Ausgangsstoffe der allgemeinen Formel (III) sind bekannte organische Syntheschemikalien.

Das erfindungsgemäße Verfahren zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) wird vorzugsweise unter Verwendung eines Säureakzeptors durchgeführt. Als Säureakzeptoren für das erfindungsgemäße Verfahren kommen im allgemeinen die üblichen anorganischen oder organischen Basen oder Säurebindemittel in Betracht. Hierzu gehören vorzugsweise Alkalimetall- oder Erdalkalimetall- -acetate, -amide, -carbonate, -hydrogencarbonate, -hydride, -hydroxide oder -alkanolate, wie beispielsweise Natrium-, Kalium- oder Calcium-acetat, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calciumamid, Natrium-, Kalium- oder Calcium-carbonat, Natrium-, Kalium- oder Calciumhydrogencarbonat, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calciumhydrid, Lithium-, Natrium-, Kalium- oder Calciumhydroxid, Natrium- oder Kalium- -methanolat, -ethanolat, -n- oder -i-propanolat, -n-, -i-, -s- oder -t-butanolat; weiterhin auch basische organische Stickstoffverbindungen, wie beispielsweise Trimethylamin, Triethylamin, Tripropylamin, Tributylamin, Ethyl-diisopropylamin, N,N-Dimethyl-cyclohexylamin, Dicyclohexylamin, Ethyl-dicyclohexylamin, N,N-Dimethyl-anilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, 2-Methyl-, 3-Methyl-, 4-Methyl-, 2,4-Dimethyl-, 2,6-Dimethyl-, 3,4-Dimethyl- und 3,5-Dimethyl-pyridin, 5-Ethyl-2-methyl-pyridin, 4-Di-

methylamino-pyridin, N-Methyl-piperidin, 1,4-Diazabicyclo[2,2,2]-octan (DABCO), 1,5-Diazabicyclo[4,3,0]-non-5-en (DBN), oder 1,8-Diazabicyclo[5,4,0]-undec-7-en (DBU).

5 Das erfindungsgemäße Verfahren zur Herstellung der Verbindungen der Formel (I) wird vorzugsweise unter Verwendung eines Verdünnungsmittels durchgeführt. Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens kommen vor allem inerte organische Lösungsmittel in Betracht. Hierzu gehören insbesondere aliphatische, alicyclische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Dioxan, Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldimethyl- oder -diethylether; Ketone, wie Aceton, Butanon oder Methyl-isobutyl-keton; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril oder Butyronitril; Amide, 10 wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methyl-formanilid, N-Methyl-pyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester, Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid, Alkohole, wie Methanol, Ethanol, n- oder i-Propanol, Ethylenglykolmonomethylether, Ethylenglykolmonoethylether, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether, deren Gemische mit Wasser oder reines Wasser. 20

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen 0°C und 150°C, vorzugsweise zwischen 10°C und 120°C. 25

Das erfindungsgemäße Verfahren wird im allgemeinen unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich, das erfindungsgemäße Verfahren unter erhöhtem oder vermindertem Druck - im allgemeinen zwischen 0,1 bar und 10 bar - durchzuführen. 30

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens werden die Ausgangsstoffe im allgemeinen in angenähert äquimolaren Mengen eingesetzt. Es ist jedoch auch möglich, eine der Komponenten in einem größeren Überschuß zu verwenden. Die Um-

WO 98/39304

- 33 -

PCT/EP98/00972

setzung wird im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels durchgeführt und das Reaktionsgemisch wird im allgemeinen mehrere Stunden bei der erforderlichen Temperatur gerührt. Die Aufarbeitung wird nach üblichen Methoden durchgeführt (vgl. die Herstellungsbeispiele).

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als Defolianten, Desiccants, Krautabtötmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen, wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewandten Menge ab.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica, Abutilon, Emex, Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea, Trifolium, Ranunculus, Taraxacum.

Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria, Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, Apera.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

5

Die Verbindungen eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die Verbindungen zur Unkrautbekämpfung in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Citrus-, Nuß-,  
10 Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen, auf Zier- und Sportrasen und Weideflächen und zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

15

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) eignen sich insbesondere zur selektiven Bekämpfung von monokotylen und dikotylen Unkräutern in monokotylen Kulturen, wie z.B. in Weizen, sowohl im Vorauf- als auch im Nachaufverfahren.

20

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

25

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumzeugenden Mitteln.

30

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe,

WO 98/39304

- 35 -

PCT/EP98/00972

wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

5

Als feste Trägerstoffe kommen in Frage: z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaumzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylarylpolyglykoether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

15

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulvrige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

20

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

25

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

30

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

5

Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide infrage, beispielsweise

Acetochlor, Acifluorfen(-sodium), Aclonifen, Alachlor, Alloxydim(-sodium),  
Ametryne, Amidochlor, Amidosulfuron, Asulam, Atrazine, Azimsulfuron, Benazolin,  
10 Benfuresate, Bensulfuron(-methyl), Bentazon, Benzofenap, Benzoylprop(-ethyl), Bi-  
alaphos, Bifenox, Bromobutide, Bromofenoxim, Bromoxynil, Butachlor, Butylate,  
Cafenstrole, Carbetamide, Chlormethoxyfen, Chloramben, Chloridazon, Chlorimuron(-  
ethyl), Chlornitrofen, Chlorsulfuron, Chlortoluron, Cinmethylin, Cinosulfuron,  
Clethodim, Clodinafop(-propargyl), Clomazone, Clopyralid, Clopyrasulfuron, Clor-  
15 ansulam(-methyl), Cumyluron, Cyanazine, Cycloate, Cyclosulfamuron, Cycloxydim,  
Cyhalofop(-butyl), 2,4-D, 2,4-DB, 2,4-DP, Desmedipham, Diallate, Dicamba, Diclo-  
fop(-methyl), Difenzoquat, Diflufenican, Dimefuron, Dimepiperate, Dimethachlor, Di-  
methametryn, Dimethenamid, Dinitramine, Diphenamid, Diquat, Dithiopyr, Diuron,  
Dymron, EPTC, Esprocarb, Ethalfuralin, Ethametsulfuron(-methyl), Ethofumesate,  
20 Ethoxyfen, Etobenzanid, Fenoxaprop(-ethyl), Flamprop(-isopropyl), Flamprop(-iso-  
propyl-L), Flamprop(-methyl), Flazasulfuron, Fluazifop(-butyl), Flumetsulam, Flumi-  
clorac(-pentyl), Flumioxazin, Flumipropyn, Fluometuron, Fluorochloridone, Fluoro-  
glycofen(-ethyl), Flupoxam, Flupropacil, Flurenol, Fluridone, Fluroxypyr, Flur-  
primidol, Flurtamone, Fomesafen, Glufosinate(-ammonium), Glyphosate(-isopropyl-  
25 ammonium), Halosafen, Haloxyfop(-ethoxyethyl), Hexazinone, Imazamethabenz(-  
methyl), Imazamethapyr, Imazamox, Imazapyr, Imazaquin, Imazethapyr, Imazo-  
sulfuron, Ioxynil, Isopropalin, Isoproturon, Isoxaben, Isoxaflutole, Isoxapyrifop,  
Lactofen, Lenacil, Linuron, MCPA, MCPP, Mefenacet, Metamitron, Metazachlor,  
Methabenzthiazuron, Metobenzuron, Metobromuron, Metolachlor, Metosulam, Met-  
30 oxuron, Metribuzin, Metsulfuron(-methyl), Molinate, Monolinuron, Naproanilide,  
Napropamide, Neburon, Nicosulfuron, Norflurazon, Orbencarb, Oryzalin, Oxadiazon,  
Oxyfluorfen, Paraquat, Pendimethalin, Phenmedipham, Piperophos, Pretilachlor,  
Primisulfuron(-methyl), Prometryn, Propachlor, Propanil, Propaquizafop, Propyz-

WO 98/39304

- 37 -

PCT/EP98/00972

amide, Prosulfocarb, Prosulfuron, Pyrazolate, Pyrazosulfuron(-ethyl), Pyrazoxyfen, Pyributicarb, Pyridate, Pyriothiobac(-sodium), Quinchlorac, Quinmerac, Quizalofop(-ethyl), Quizalofop(-p-tefuryl), Rimsulfuron, Sethoxydim, Simazine, Simetryn, Sulcotrione, Sulfentrazone, Sulfometuron(-methyl), Sulfosate, Tebutam, Tebuthiuron, Terbutylazine, Terbutryn, Thenylchlor, Thiafluamide, Thiazopyr, Thidiazimin, Thifensulfuron(-methyl), Thiobencarb, Thiocarbazil, Tralkoxydim, Triallate, Triasulfuron, Tribenuron(-methyl), Triclopyr, Tridiphane, Trifluralin und Triflusulfuron.

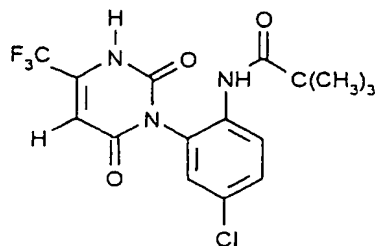
Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstruktur-Verbesserungsmitteln ist möglich.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor, als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden. Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

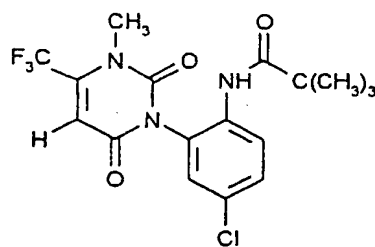
Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 1 g und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, vorzugsweise zwischen 5 g und 5 kg pro ha.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

**Herstellungsbeispiele:****Beispiel 1**

5 Eine Mischung aus 1,6 g (5,23 mMol) 1-(2-Amino-5-chlor-phenyl)-3,6-dihydro-2,6-dioxo-4-trifluormethyl-1(2H)-pyrimidin, 0,72 g (5,23 mMol) Pivalinsäurechlorid, 1,21 g (12 mMol) Triethylamin und 30 ml Acetonitril wird 45 Minuten bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt und anschließend im Wasserstrahlvakuum eingeeengt.  
10 Der Rückstand wird dann mit 1N-Salzsäure, Diethylether und Petrolether verrührt und das hierbei kristallin anfallende Produkt wird durch Absaugen isoliert.

Man erhält 1,65 g (81% der Theorie) 1-(5-Chlor-2-pivaloylamino-phenyl)-3,6-dihydro-2,6-dioxo-4-trifluormethyl-1(2H)-pyrimidin vom Schmelzpunkt 276°C.

**Beispiel 2**

20 Eine Mischung aus 1,17 g (3 mMol) 1-(5-Chlor-2-pivaloylamino-phenyl)-3,6-dihydro-2,6-dioxo-4-trifluormethyl-1(2H)-pyrimidin, 0,42 g (3 mMol) Dimethylsulfat, 0,46 g (3 mMol) Kaliumcarbonat und 20 ml Aceton wird 45 Minuten unter Rückfluß erhitzt und anschließend im Wasserstrahlvakuum eingeeengt. Dann wird der Rückstand mit



WO 98/39304

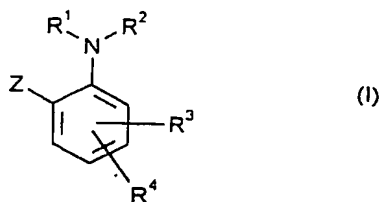
- 39 -

PCT/EP98/00972

1N-Salzsäure, Essigsäureethylester und Diethylether verrührt. Das hierbei kristallin angefallene Produkt wird durch Absaugen isoliert.

Man erhält 1,05 g (88% der Theorie) 1-(5-Chlor-2-pivaloylamino-phenyl)-3,6-dihydro-2,6-dioxo-3-methyl-4-trifluormethyl-1(2H)-pyrimidin vom Schmelzpunkt 267°C.

Analog zu den Herstellungsbeispielen 1 und 2 sowie entsprechend der allgemeinen Beschreibung des erfindungsgemäßen Herstellungsverfahrens können beispielsweise auch die in den nachstehenden Tabellen aufgeführten Verbindungen der Formel (I) hergestellt werden.



Ein großer Teil der erfindungsgemäßen Wirkstoffe kann durch die nachstehende allgemeine Formel (Ia) wiedergegeben werden:

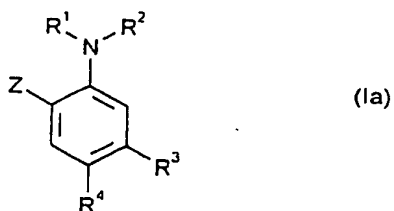
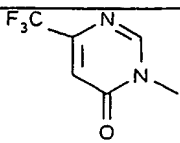
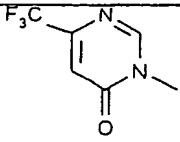
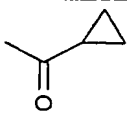
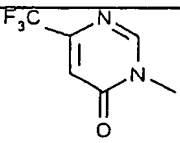
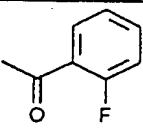
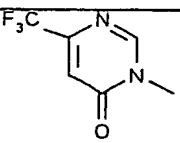
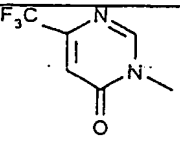
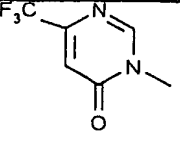
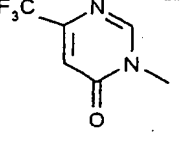
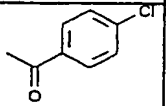
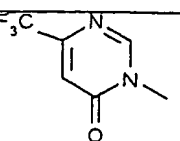


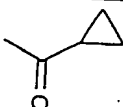
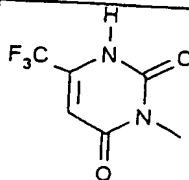
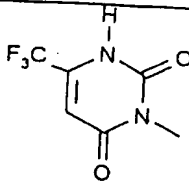
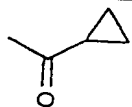
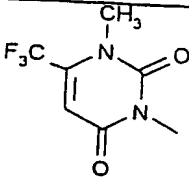
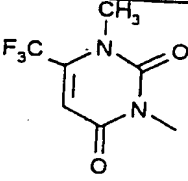
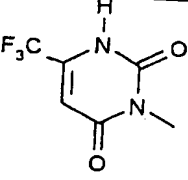
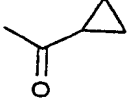
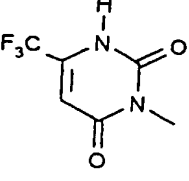
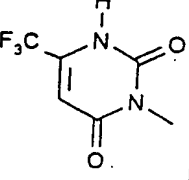
Tabelle 1a: Beispiele für die Verbindungen der Formel (Ia)

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
3	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	H	H		(amorph)
4	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	Cl	H		149
5	H		Cl	H		(amorph)
6	H		Cl	H		(amorph)
7	H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	Cl	H		184
8	H	-CO-CH <sub>3</sub>	Cl	H		(amorph)
9	H	-CO-CF <sub>3</sub>	Cl	H		(amorph)
10	H		Cl	H		(amorph)

WO 98/39304

- 41 -

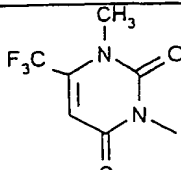
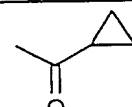
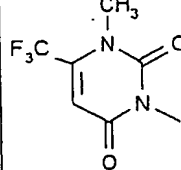
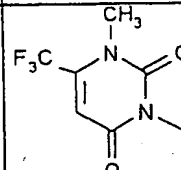
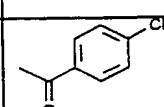
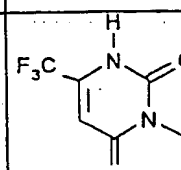
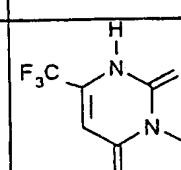
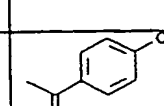
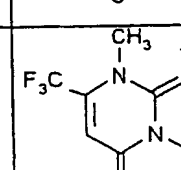
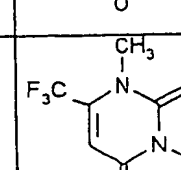
PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
11	H		H	Cl		260
12	H	-CO-CH <sub>3</sub>	H	Cl		260
13	H		H	Cl		208
14	H	-CO-CH <sub>3</sub>	H	Cl		218
15	H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	Cl	H		267
16	H		Cl	H		227
17	H	-CO-CH <sub>3</sub>	Cl	H		294

WO 98/39304

- 42 -

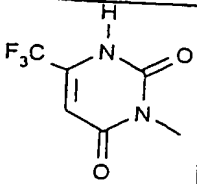
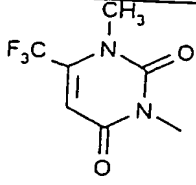
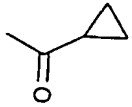
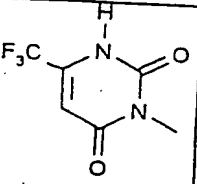
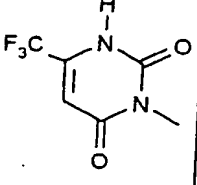
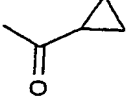
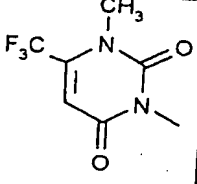
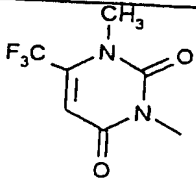
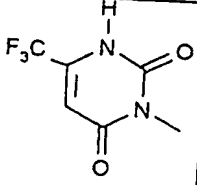
PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
18	H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	Cl	H		209
19	H		Cl	H		205
20	H	-CO-CH <sub>3</sub>	Cl	H		223
21	H		Cl	H		251
22	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	Cl	H		221
23	H		Cl	H		225
24	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	Cl	H		205

WO 98/39304

- 43 -

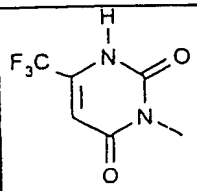
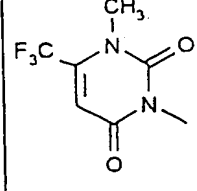
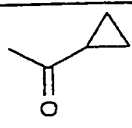
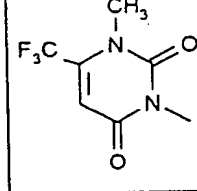
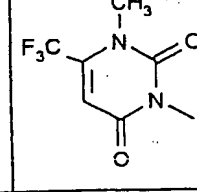
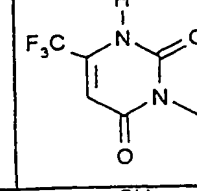
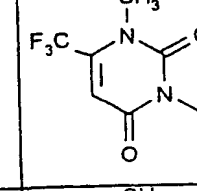
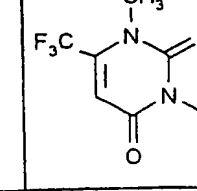
PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
25	H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	CH <sub>3</sub>	H		265
26	H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	CH <sub>3</sub>	H		185
27	H		CH <sub>3</sub>	H		253
28	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	CH <sub>3</sub>	H		227
29	H		CH <sub>3</sub>	H		224
30	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	CH <sub>3</sub>	H		174
31	H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	H	H		252

WO 98/39304

- 44 -

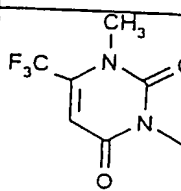
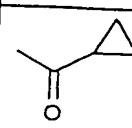
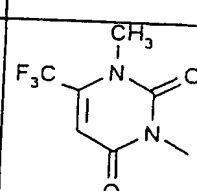
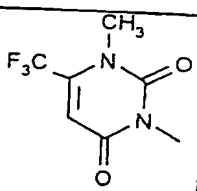
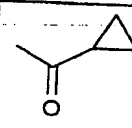
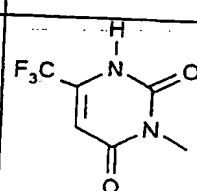
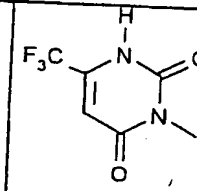
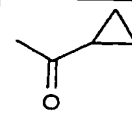
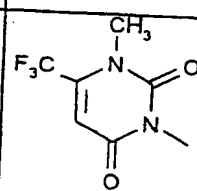
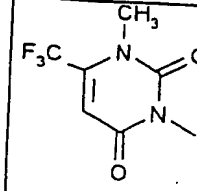
PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
32	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	H	H		252
33	H	-CO-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> -t	H	H		209
34	H		H	H		187
35	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	H	H		171
36	H	-CO-CF <sub>3</sub>	Cl	H		245
37	H	-CO-CF <sub>3</sub>	Cl	H		175
38	H	-SO <sub>2</sub> -CH <sub>3</sub>	Cl	H		212

WO 98/39304

- 45 -

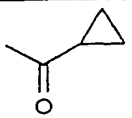
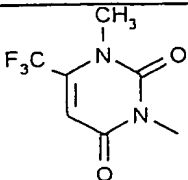
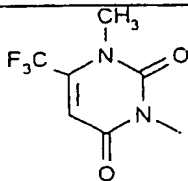
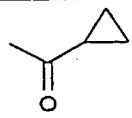
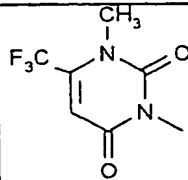
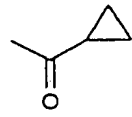
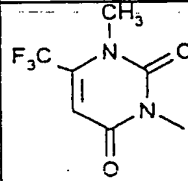
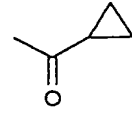
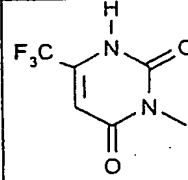
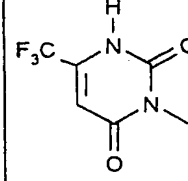
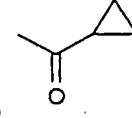
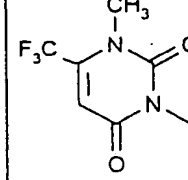
PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
39	CH <sub>3</sub>	-CO-CF <sub>3</sub>	Cl	H		196
40	H		CF <sub>3</sub>	H		229
41	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	CF <sub>3</sub>	H		215
42	H		F	H		253
43	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	F	H		236
44	H		F	H		125
45	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	F	H		144

WO 98/39304

- 46 -

PCT/EP98/00972

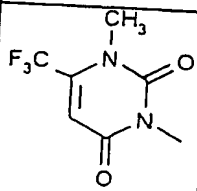
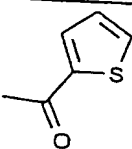
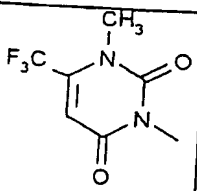
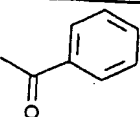
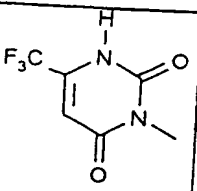
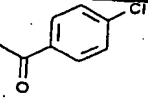
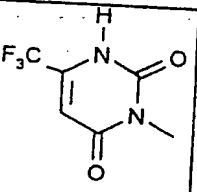
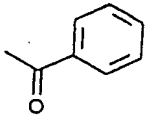
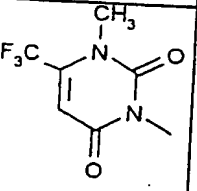
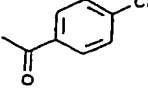
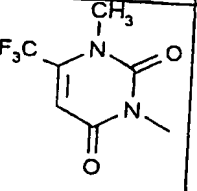
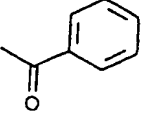
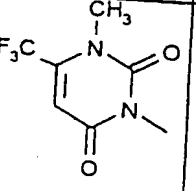
Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
46	H		Cl	Cl		225
47	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	Cl	Cl		242
48	H		Br	H		211
49	H		CN	H		217
50	H		OCH <sub>3</sub>	H		230
51	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	OCH <sub>3</sub>	H		177
52	H		OCH <sub>3</sub>	H		159



WO 98/39304

- 47 -

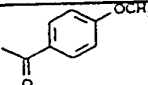
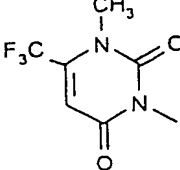


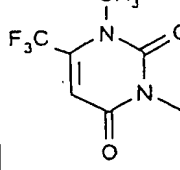

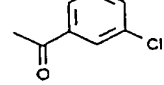
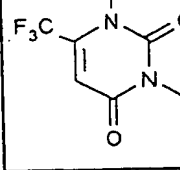
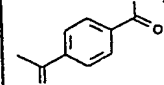
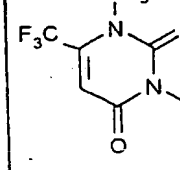

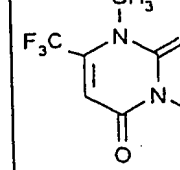
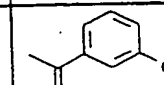
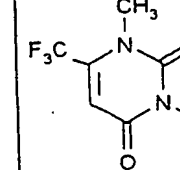
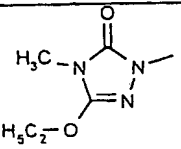
PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
53	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	OCH <sub>3</sub>	H		114,
54	H		Cl	H		181
55	H		F	H		240
56	H		F	H		220
57	H		F	H		(amorph)
58	H		F	H		202
59	H		Cl	H		175

WO 98/39304

- 48 -

PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
60	H		Cl	H		105
61			Cl	H		134
62			Cl	H		193
63	H		Cl	H		205
64	H		Cl	H		225
65	H		Cl	H		156
66	H	-CO-CH <sub>3</sub>	H	H		120

WO 98/39304

- 49 -

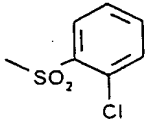
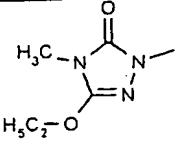
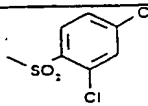
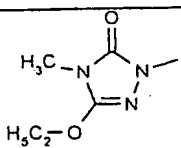
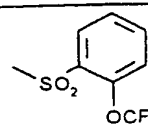
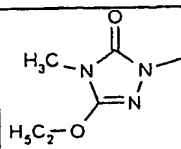
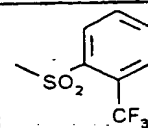
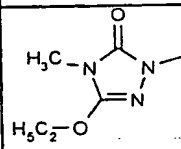
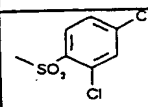
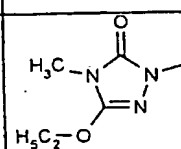
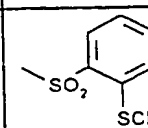
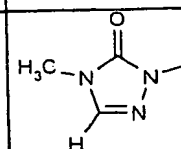
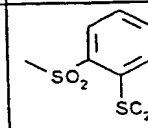
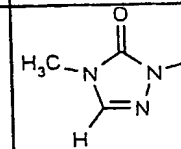
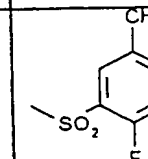
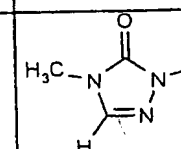
PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
67	H		H	H		153
68	H		H	H		120
69	H		H	H		128
70	H		H	H		96
71	H		H	H		73
72	H		H	H		129
73	H		H	H		108
74	H		H	H		180

WO 98/39304

- 50 -

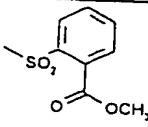
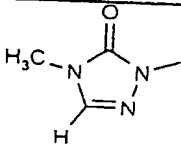
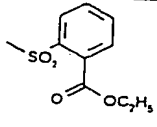
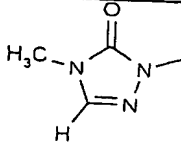
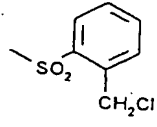
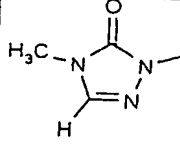
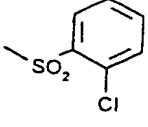
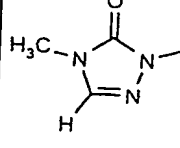
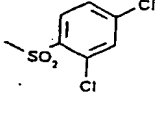
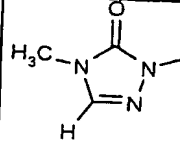
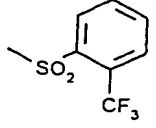
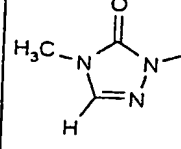
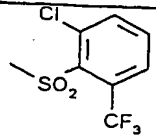
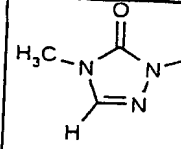
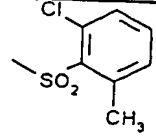
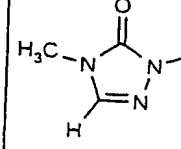
PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
75	H		H	H		156
76	H		H	H		132
77	H		H	H		130
78	H		H	H		187
79	H		H	H		88
80	H		H	H		167
81	H		H	H		130
82	H		H	H		177

WO 98/39304

- 51 -

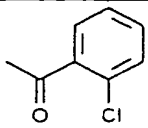
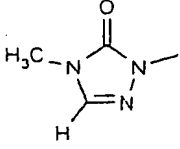
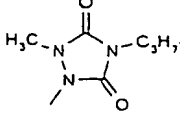
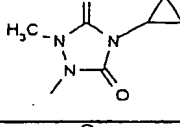
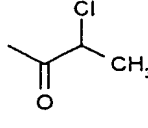
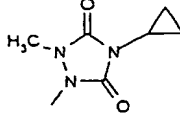
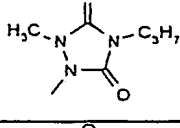
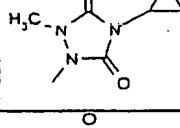
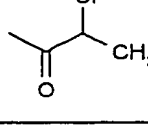
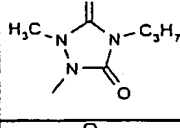
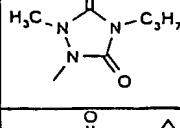
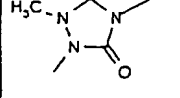
PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
83	H		H	H		193
84	H		H	H		126
85	H		H	H		143
86	H		H	H		150
87	H		H	H		189
88	H		H	H		154
89	H		H	H		147
90	H		H	H		147

WO 98/39304

- 52 -

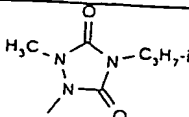
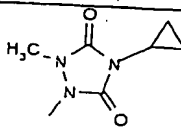
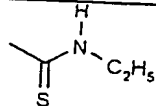
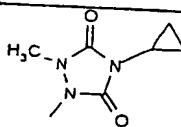
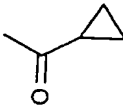
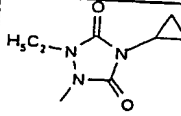
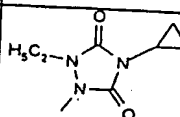
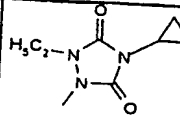
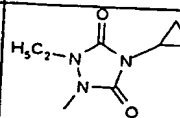
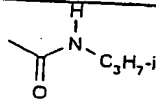
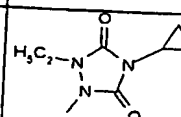
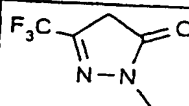
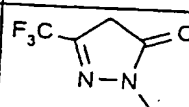
PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
91	H		H	H		128
92	H	-CO-CH <sub>2</sub> Cl	H	H		81
93	H	-CO-CH <sub>3</sub>	H	H		154
94	H		H	H		74
95	H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H		77
96	H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H		89
97	H		H	H		87
98	H	-CO-CH <sub>3</sub>	H	H		81
99	H	-CO-CH <sub>2</sub> Cl	H	H		93

WO 98/39304

- 53 -

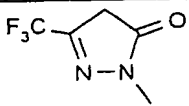
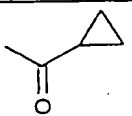
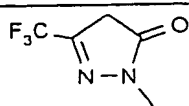
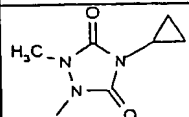
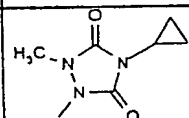
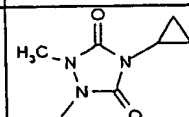
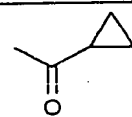
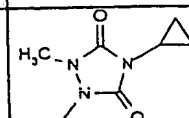
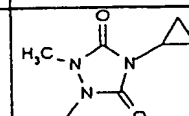
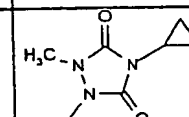
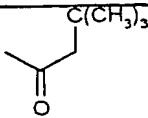
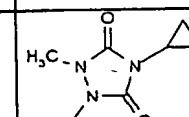
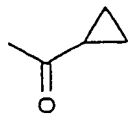
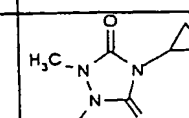
PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
100	H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H		139
101	H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H		165
102	H		H	H		90
103	H		H	H		138
104	H	-CO-CH <sub>3</sub>	H	H		94
105	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-i</sub>	H	H		116
106	H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H		70
107	H		H	H		119
108	H	-CO-CH <sub>3</sub>	H	H		47
109	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-i</sub>	H	H		148

WO 98/39304

- 54 -

PCT/EP98/00972

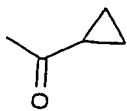
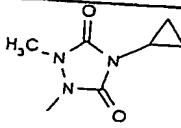
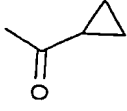
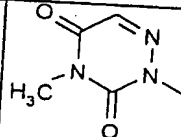
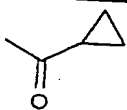
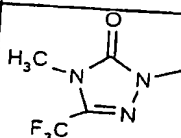
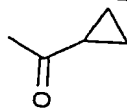
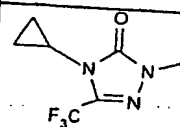
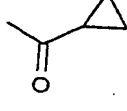
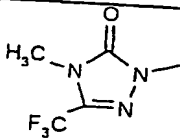
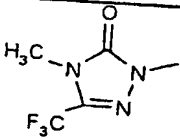
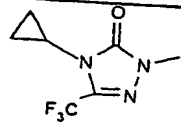
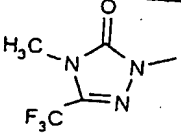
Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
110	H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H		165
111	H		H	H		178
112	H	-CO-CH <sub>3</sub>	Cl	H		67
113	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	Cl	H		147
114	H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	Cl	H		85
115	H		Cl	H		155
116	H	-CO-CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>		124
117	H	-CO-CH <sub>2</sub> Cl	H	CH <sub>3</sub>		136
118	H		H	CH <sub>3</sub>		(amorph)
119	H		H	CH <sub>3</sub>		(amorph)



WO 98/39304

- 55 -

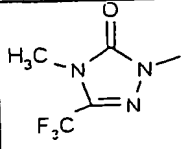
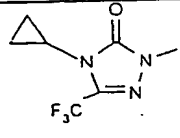
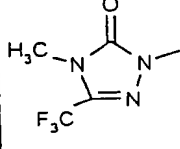
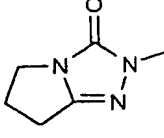
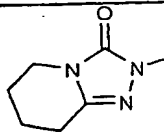
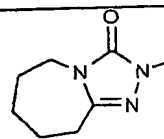
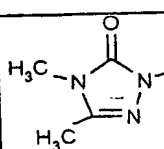
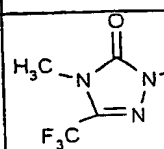
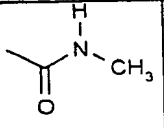
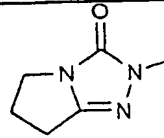
PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
120	H		CF <sub>3</sub>	H		172
121	H		F	H		<sup>1</sup> H-NMR (DMSO- D <sub>6</sub> , δ): 0,80-0,81; 3,25; 7,40- 7,48; 9,63 ppm
122	H		H	H		(amorph)
123	H		H	CH <sub>3</sub>		116
124	H		H	CH <sub>3</sub>		(amorph)
125	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	H	CH <sub>3</sub>		117
126	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	H	CH <sub>3</sub>		139
127	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> -i	H	H		114

WO 98/39304

- 56 -

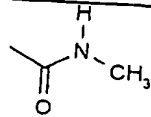
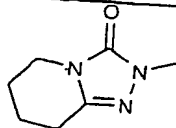
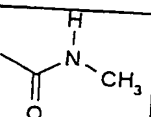
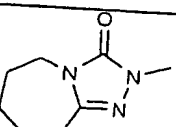
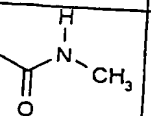
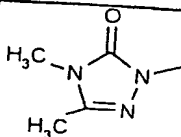
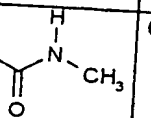
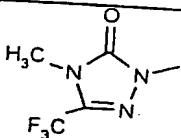
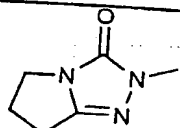
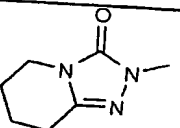
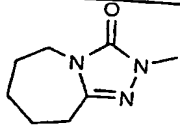
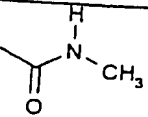
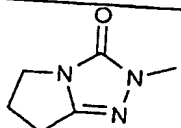
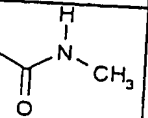
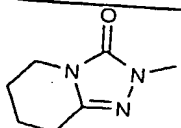
PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
128	H	-CO-OCH <sub>3</sub>	H	H		(amorph)
129	H	-CO-OCH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>		(amorph)
130	H	-CO-OCH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>		109
131	H	-CO-OCH <sub>3</sub>	Cl	H		141
132	H	-CO-OCH <sub>3</sub>	Cl	H		111
133	H	-CO-OCH <sub>3</sub>	Cl	H		120
134	H	-CO-OCH <sub>3</sub>	Cl	H		141
135	H	-CO-OCH <sub>3</sub>	Cl	H		105
136	H		Cl	H		188

WO 98/39304

- 57 -

PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
137	H		Cl	H		185
138	H		Cl	H		240
139	H		Cl	H		210
140	H		Cl	H		154
141	H	-CO-OCH <sub>3</sub>	H	H		(amorph)
142	H	-CO-OCH <sub>3</sub>	H	H		(amorph)
143	H	-CO-OCH <sub>3</sub>	H	H		(amorph)
144	H		H	H		(amorph)
145	H		H	H		189

WO 98/39304

- 58 -

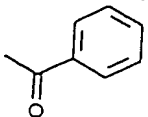
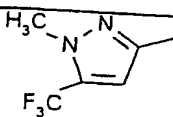
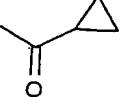
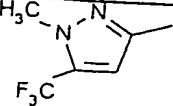
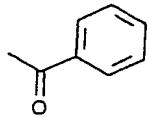
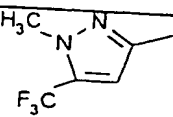
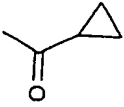
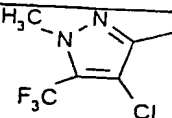
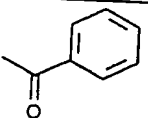
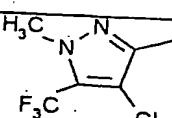
PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
146	H		H	H		154
147			Cl	H		175
148	H		Cl	H		160
149	H		Cl	H		71
150	H		Cl	H		121
151	H		Cl	H		99
152	H		Cl	H		71
153	H		Cl	H		115
154	H		Cl	H		114

WO 98/39304

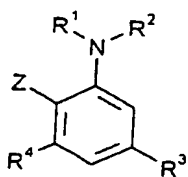
- 59 -

PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
155	H		Cl	H		132
156	H		H	H		87
157	H		H	H		128
158	H		H	H		104
159	H		H	H		129

Ein weiterer Teil der erfindungsgemäßen Wirkstoffe kann durch die nachstehende allgemeine Formel (Ib) wiedergegeben werden:

5



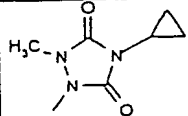
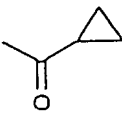
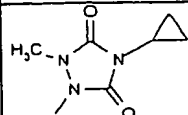
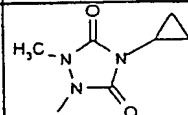
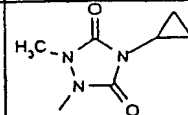
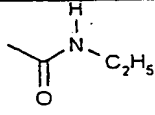
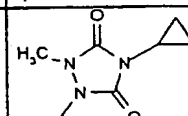
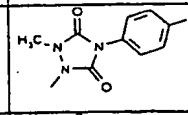
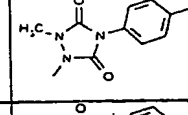
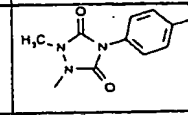
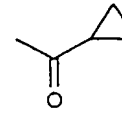
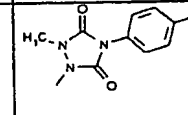
(Ib)

WO 98/39304

- 60 -

PCT/EP98/00972

**Tabelle 1b:** Beispiele für die Verbindungen der Formel (Ib)

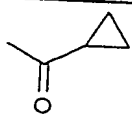
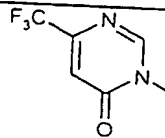
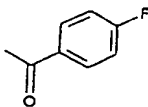
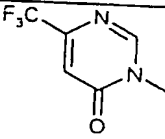

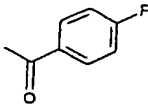
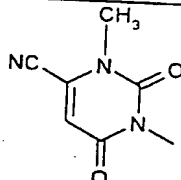
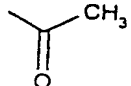
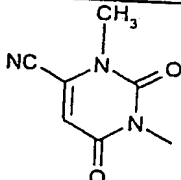
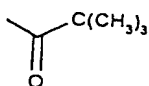
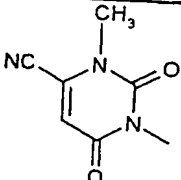
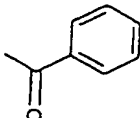
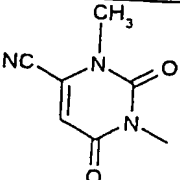
Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
160	H	-CO-CH <sub>3</sub>	H	Cl		147
161	H		H	Cl		66
162	H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	Cl		148
163	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-i</sub>	H	Cl		176
164	H		H	Cl		120
165	H	-CO-CH <sub>3</sub>	H	Cl		118
166	H	-CO-C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	Cl		84
167	H	-CO-C <sub>3</sub> H <sub>7-i</sub>	H	Cl		86
168	H		H	Cl		110

WO 98/39304

- 61 -

PCT/EP98/00972

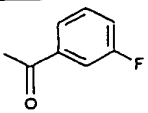
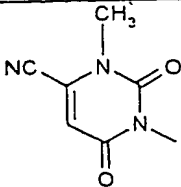
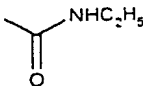
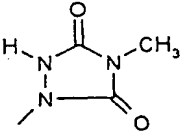
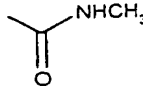
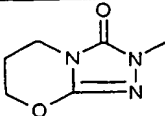
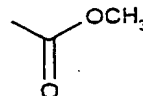
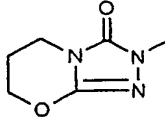
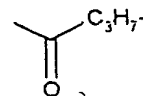
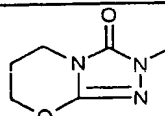
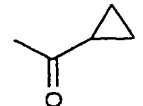
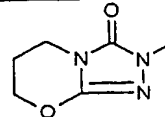
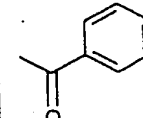
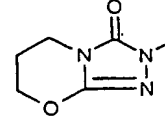
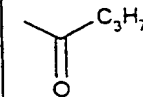
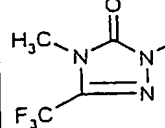
**Tabelle 1c:** weitere Beispiele für Verbindungen der Formel (Ia)

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
169	H		H	CH <sub>3</sub>		(amorph)
170	H		H	CH <sub>3</sub>		215
171			Cl	H		260
172	H		Cl	H		212
173	H		Cl	H		221
174	H		Cl	H		208

WO 98/39304

- 62 -

PCT/EP98/00972

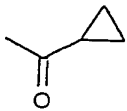
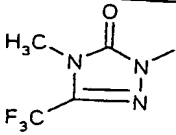
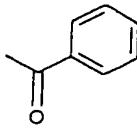
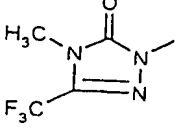
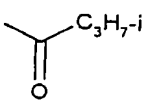
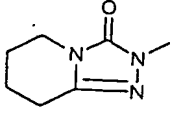
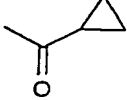
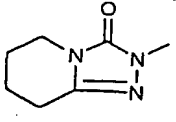
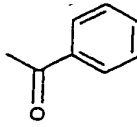
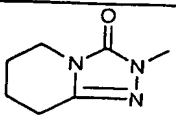
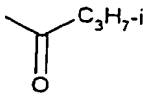
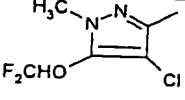
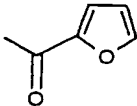
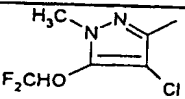
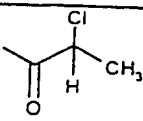
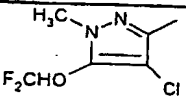
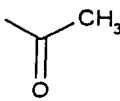
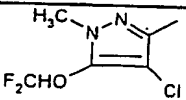
Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
175	H		Cl	H		215
176	H		CF <sub>3</sub>	H		194
177	H		Cl	H		199
178	H		Cl	H		153
179	H		Cl	H		178
180	H		Cl	H		201
181	H		Cl	H		179
182	H		Cl	H		108



WO 98/39304

- 63 -

PCT/EP98/00972

Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
183	H		Cl	H		113
184	H		Cl	H		153
185	H		Cl	H		99
186	H		Cl	H		147
187	H		Cl	H		191
188	H		Cl	H		85
189	H		Cl	H		163
190	H		Cl	H		99
191	H		Cl	H		137

WO 98/39304

- 64 -

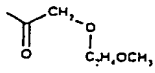
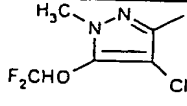
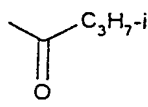
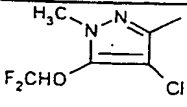
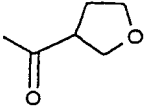
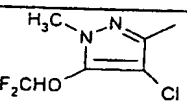
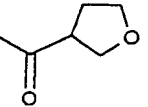
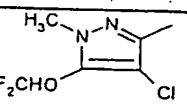
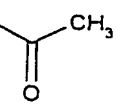
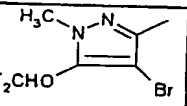
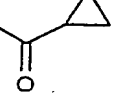
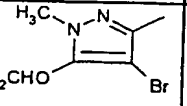
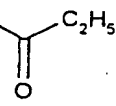
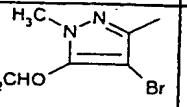
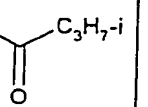
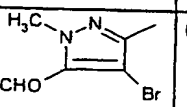
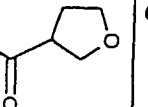
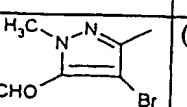
PCT/EP98/00972

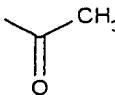
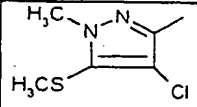

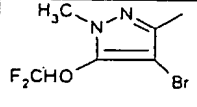
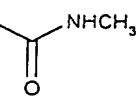
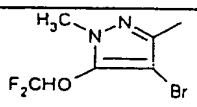
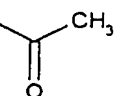
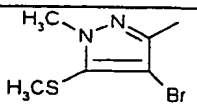
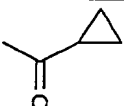
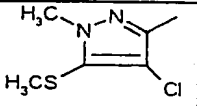
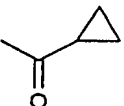
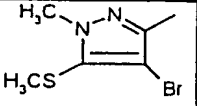
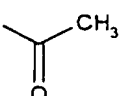
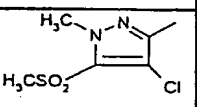
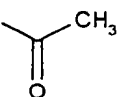
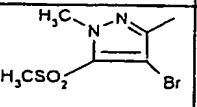
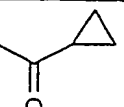
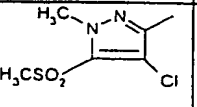
Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
192	H		Cl	H		120
193	H		Cl	H		58
194	H		Cl	H		40
195	H		Cl	H		125
196	H		Cl	H		86
197	H		Cl	H		174
198	H		Cl	H		129
199	H		F	H		100
200	H		F	H		55
201	H		F	H		98

WO 98/39304

- 65 -

PCT/EP98/00972

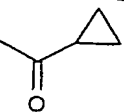
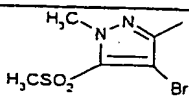
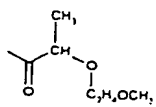
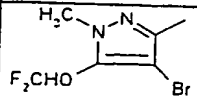
Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
202	H		F	H		58
203	H		F	H		63
204	H		Br	H		(amorph)
205	H		CN	H		(amorph)
206	H		Cl	H		(amorph)
207	H		Cl	H		(amorph)
208	H		Cl	H		(amorph)
209	H		Cl	H		(amorph)
210	H		Cl	H		(amorph)

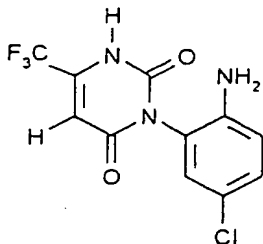
Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
211	H		Cl	H		(amorph)
212	H		Cl	H		(amorph)
213	H		Cl	H		(amorph)
214	H		Cl	H		(amorph)
215	H		Cl	H		(amorph)
216	H		Cl	H		(amorph)
217	H		Cl	H		(amorph)
218	H		Cl	H		(amorph)
219	H		Cl	H		(amorph)

WO 98/39304

- 67 -

PCT/EP98/00972

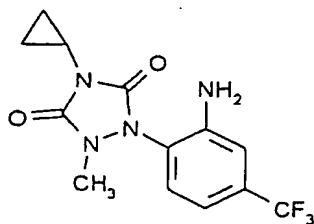
Bsp.- Nr.	R <sup>1</sup>	R <sup>2</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelz- punkt (°C)
220	H		Cl	H		(amorph)
221	H		Cl	H		(amorph)

Ausgangsstoffe der Formel (II):Beispiel (II-1)

5 Eine Mischung aus 15,0 g (44,7 mMol) 1-(5-Chlor-2-nitro-phenyl)-3,6-dihydro-2,6-dioxo-4-trifluormethyl-1(2H)-pyrimidin, 30,25 g Zinn(II)-chlorid-Dihydrat, 20 ml Wasser und 100 ml 33%iger Salzsäure wird 45 Minuten bei 80°C gerührt und anschließend im Wasserstrahlvakuum eingeeengt. Der Rückstand wird dann in Wasser  
10 aufgenommen und auf eine 5%ige wässrige Lösung von Natriumdihydrogenphosphat und auf Essigsäureethylester gegeben. Die organische Phase wird abgetrennt, mit 5%iger wässriger Lösung von Natriumdihydrogenphosphat gewaschen, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt, der Rückstand mit Diethylether/Petrolether digeriert und das kristallin anfallende Produkt  
15 durch Absaugen isoliert.

Man erhält 11,6 g (85% der Theorie) 1-(2-Amino-5-chlor-phenyl)-3,6-dihydro-2,6-dioxo-4-trifluormethyl-1(2H)-pyrimidin vom Schmelzpunkt 293°C.

20 Beispiel (II-2)



Eine Mischung aus 2,3 g (7 mMol) 1-(2-Nitro-4-trifluormethyl-phenyl)-5-cyclopropyl-2-methyl-3,5-dioxo-1,2,4-triazol, 2,4 g (42 mMol) Eisen und 100 ml 50%igem

WO 98/39304

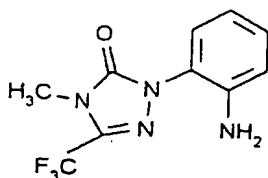
- 69 -

PCT/EP98/00972

5 wässrigem Ethanol wird unter Rückfluß erhitzt und dabei wird eine Lösung von 0,2 ml konz. Salzsäure in 10 ml 50%igem wässrigem Ethanol tropfenweise zur Mischung gegeben. Die Reaktionsmischung wird 60 Minuten unter Rückfluß erhitzt und dann über Kieselgel abgesaugt. Vom Filtrat wird das Lösungsmittel im Wasserstrahl-

10 Man erhält 2,4 g (98% der Theorie) 1-(2-Amino-4-trifluormethyl-phenyl)-5-cyclopropyl-2-methyl-3,5-dioxo-1,2,4-triazol als kristallinen Rückstand vom Schmelzpunkt 154°C.

Beispiel (II-3)

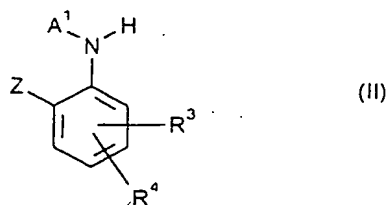


15 12 g (41 mMol) 4-Methyl-2-(2-nitro-phenyl)-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 100 ml Methanol gelöst und in Gegenwart von 3 g Raney-Nickel 4 Stunden lang bei 50°C und 50 bar Wasserstoffdruck hydriert. Der erkaltete Reaktionsansatz wird filtriert und das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt. Der Rückstand wird dann mit Toluol azeotrop getrocknet. Nach erneutem Einengen wird der Rückstand mit Petrolether digeriert und das kristallin anfallende Produkt

20 durch Absaugen isoliert.

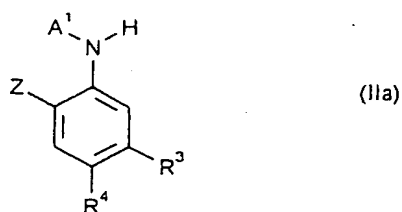
Man erhält 10 g (94% der Theorie) 2-(2-Amino-phenyl)-4-methyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 101°C.

25 Analog zu den Herstellungsbeispielen (II-1) bis (II-3) können beispielsweise auch die in den nachstehenden Tabellen (2a und 2b) aufgeführten Verbindungen der Formel (II) hergestellt werden.



Ein großer Teil der erfindungsgemäßen Vorprodukte kann durch die nachstehende allgemeine Formel (IIa) wiedergegeben werden:

5



**Tabelle 2a:** Beispiele für die Verbindungen der Formel (IIa)

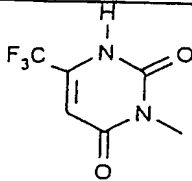
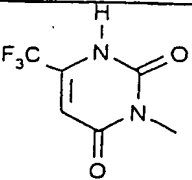
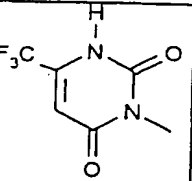
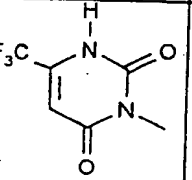
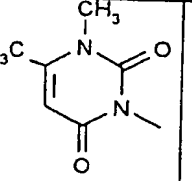
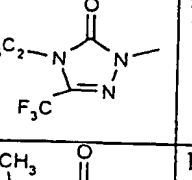
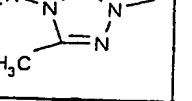
Bsp.-Nr.	A <sup>1</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
II-4	H	H	H		(amorph)
II-5	H	Cl	H		197
II-6	H	Cl	H		295

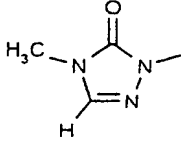
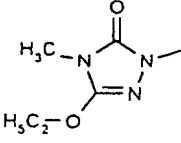
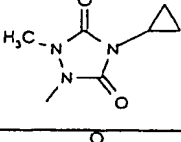
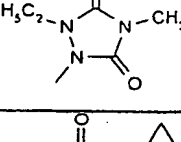
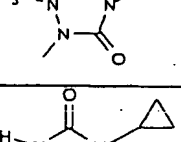
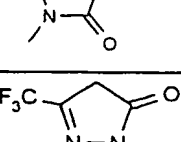
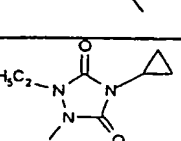
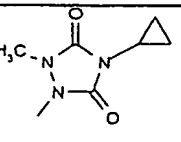
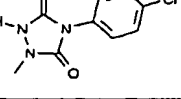



WO 98/39304

- 71 -

PCT/EP98/00972

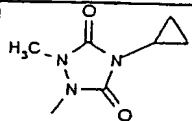
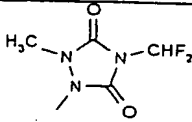
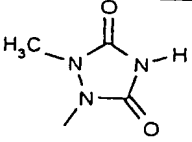
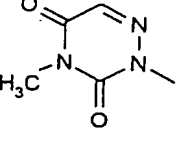
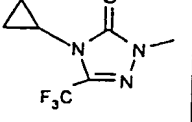
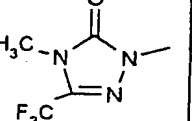
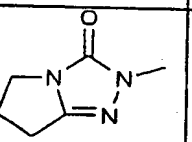
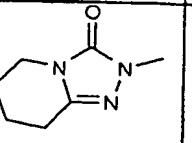
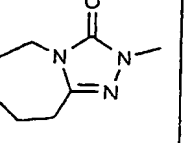
Bsp.-Nr.	A <sup>1</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
II-7	H	CH <sub>3</sub>	H		315
II-8	H	H	H		316
II-9	H	F	H		212
II-10	H	OCH <sub>3</sub>	H		>300
II-11	H	Cl	H		166
II-12	H	NO <sub>2</sub>	H		148
II-13	H	NO <sub>2</sub>	H		152

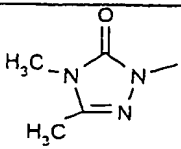
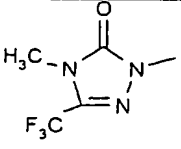
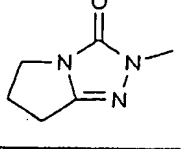
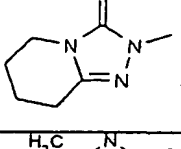
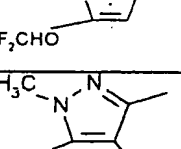
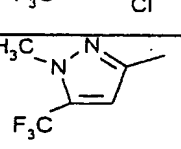
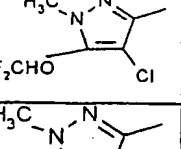
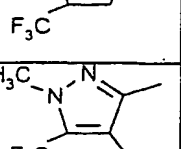
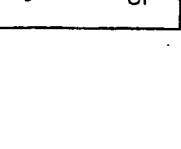

Bsp.-Nr.	A <sup>1</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
II-14	H	H	H		232
II-15	H	H	H		162
II-16	H	H	H		140
II-17	H	H	H		(amorph)
II-18	CH <sub>3</sub>	H	H		122
II-19	H	H	H		160
II-20	H	H	H		120
II-21	H	H	H		78
II-22	H	Cl	H		120
II-23	H	H	H		210

WO 98/39304

- 73 -

PCT/EP98/00972

Bsp.-Nr.	A <sup>1</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
II-24	H	H	CH <sub>3</sub>		(amorph)
II-25	H	H	H		89
II-26	H	F	H		225
II-27	H	F	H		192
II-28	H	H	CH <sub>3</sub>		99
II-29	H	H	CH <sub>3</sub>		115
II-30	H	Cl	H		114
II-31	H	Cl	H		178
II-32	H	Cl	H		130

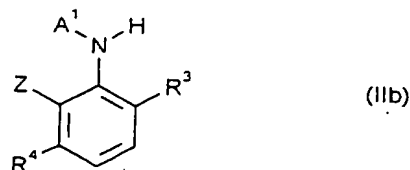
Bsp.-Nr.	A <sup>1</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
II-33	H	Cl	H		148
II-34	H	Cl	H		141
II-35	H	H	H		159
II-36	H	H	H		187
II-37	H	Cl	H		(amorph)
II-38	H	Cl	H		40
II-39	H	Cl	H		(amorph)
II-40	H	Cl	H		(amorph)
II-41	H	H	H		132
II-42	H	H	H		(amorph)

WO 98/39304

- 75 -

PCT/EP98/00972

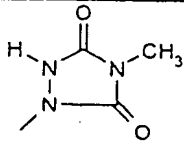
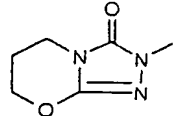
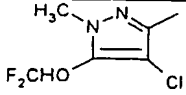
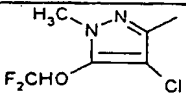
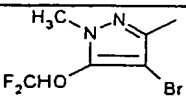
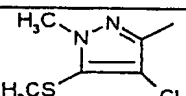
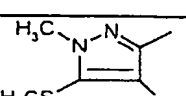
Ein weiterer Teil der erfindungsgemäßen Vorprodukte kann durch die nachstehende allgemeine Formel (IIb) wiedergegeben werden:



5

**Tabelle 2b:** Beispiele für die Verbindungen der Formel (IIb)

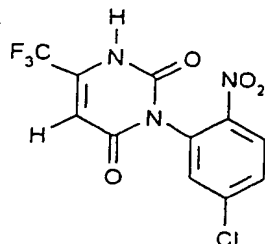
Bsp.-Nr.	A <sup>1</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
II-43	H	H	Cl		177
II-44	H	Cl	H		140
II-45	H	H	Cl		167
II-46	H	Cl	H		94
II-47	H	CF <sub>3</sub>	H		137
II-48	H	CF <sub>3</sub>	H		194

Bsp.-Nr.	A <sup>1</sup>	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
II-49	H	CF <sub>3</sub>	H		173
II-50	H	Cl	H		168
II-51	H	F	H		62
II-52	H	CN	H		(amorph)
II-53	H	Cl	H		(amorph)
II-54	H	Cl	H		(amorph)
II-55	H	Cl	H		(amorph)

WO 98/39304

PCT/EP98/00972

- 77 -

Ausgangsstoffe der Formel (IV):Beispiel (IV-1)5     Stufe 1

118,9 g (109,5 mMol) 5-Chlor-2-nitro-anilin werden in 150 ml Aceton gelöst und zu dieser Lösung werden bei Raumtemperatur (ca. 20°C) unter Rühren 27 g (128 mMol) Chlorameisensäure-trichlormethylester („Diphosgen“) tropfenweise gegeben. Die Reaktionsmischung wird 30 Minuten gerührt und dann tropfenweise mit 150 ml Ethanol versetzt. Nach weiteren 30 Minuten wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt, der Rückstand mit Wasser/Petrolether digeriert und das kristallin anfallende Produkt durch Absaugen isoliert.

15     Man erhält 22,4 g (84% der Theorie) N-(5-Chlor-2-nitro-phenyl)-O-ethyl-urethan vom Schmelzpunkt 86°C.

Stufe 2

20     25 g (0,10 Mol) 3-Amino-4,4,4-trifluor-crotonsäure-ethylester werden in 100 ml N,N-Dimethyl-formamid vorgelegt. Nach Zugabe von 3,5 g (0,15 Mol) Natriumhydrid wird die Mischung 30 Minuten bei Raumtemperatur (ca. 20°C) gerührt und dann mit 24,5 g (0,10 Mol) N-(5-Chlor-2-nitro-phenyl)-O-ethyl-urethan (vgl. Stufe 1) versetzt. Die Reaktionsmischung wird dann 150 Minuten auf 130°C erhitzt und anschließend auf etwa das gleiche Volumen Eiswasser gegeben. Man schüttelt zweimal mit Essigsäureethylester, säuert dann die wässrige Phase mit 2N-Salzsäure an und schüttelt erneut mit Essigsäureethylester. Die organische Phase wird mit Wasser ge-

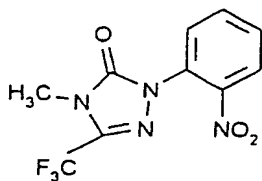
25

waschen, mit Natriumsulfat getrocknet und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt, der Rückstand mit 5 ml Essigsäureethylester, 50 ml Diethylether und 50 ml Petrolether digeriert und das kristallin anfallende Produkt durch Absaugen isoliert.

5

Man erhält 21 g (62,5% der Theorie) 1-(5-Chlor-2-nitro-phenyl)-3,6-dihydro-2,6-dioxo-4-trifluormethyl-1(2H)-pyrimidin vom Schmelzpunkt 214°C.

#### Beispiel (IV-2)



10

8,4 g (0,05 Mol) 4-Methyl-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on werden in 50 ml Dimethylsulfoxid gelöst und mit 6,9 g (0,05 Mol) Kaliumcarbonat (Pulver) und 7,0 g (0,05 Mol) 2-Fluor-nitrobenzol versetzt. Die Reaktionsmischung wird dann unter Rühren 16 Stunden lang auf 80°C erhitzt und nach Abkühlen auf 200 ml Wasser gegossen. Man extrahiert zweimal mit Methylenchlorid, wäscht die vereinigten organischen Phasen mit Wasser, trocknet mit Magnesiumsulfat und filtriert. Das Filtrat wird im Wasserstrahlvakuum eingeeengt, der Rückstand mit Diethylether digeriert und das kristallin anfallende Produkt durch Absaugen isoliert.

15

20

Man erhält 12,7 g (88% der Theorie) 4-Methyl-2-(2-nitro-phenyl)-5-trifluormethyl-2,4-dihydro-3H-1,2,4-triazol-3-on vom Schmelzpunkt 83°C.

25

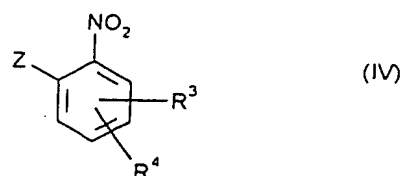
Analog zu den Herstellungsbeispielen (IV-1) und (IV-2) können beispielsweise auch die in den nachstehenden Tabellen (3a und 3b) aufgeführten Verbindungen der Formel (IV) hergestellt werden.



WO 98/39304

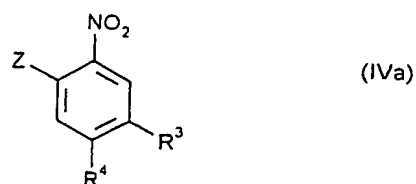
PCT/EP98/00972

- 79 -



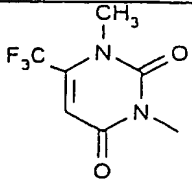
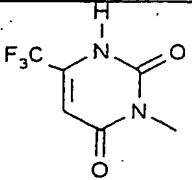
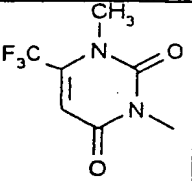
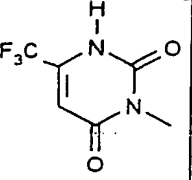
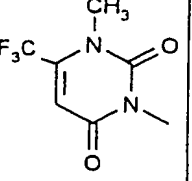
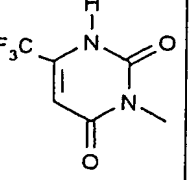
Ein großer Teil der erfindungsgemäßen Vorprodukte kann durch die nachstehende allgemeine Formel (IVa) wiedergegeben werden:

5



**Tabelle 3a:** Beispiele für die Verbindungen der Formel (IVa)

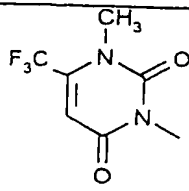
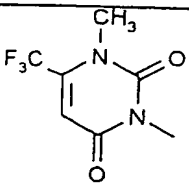
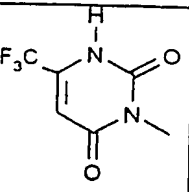
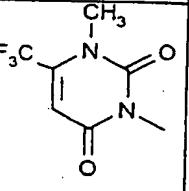
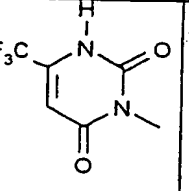
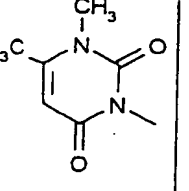
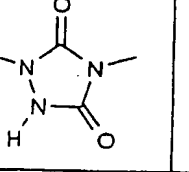
Bsp.-Nr.	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
IV-3	Cl	H		124
IV-4	H	H		113
IV-5	H	CH <sub>3</sub>		(amorph)
IV-6	H	Cl		200

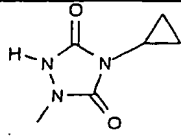
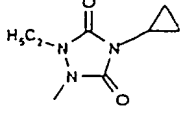
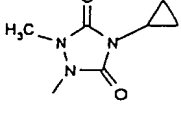
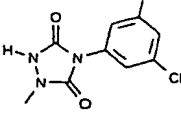
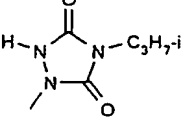
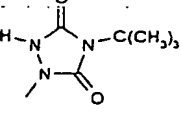
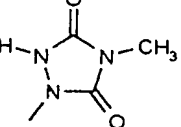
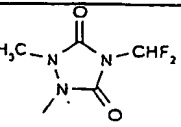
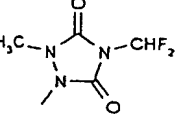
Bsp.-Nr.	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
IV-7	H	Cl		144
IV-8	Cl	H		215
IV-9	Cl	H		180
IV-10	CH <sub>3</sub>	H		250
IV-11	CH <sub>3</sub>	H		171
IV-12	H	H		215

WO 98/39304

PCT/EP98/00972

- 81 -

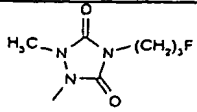
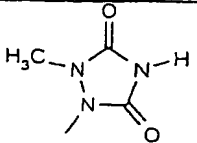
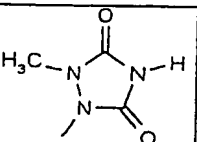
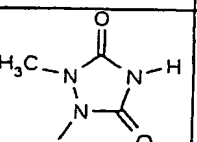
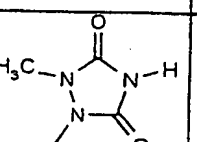
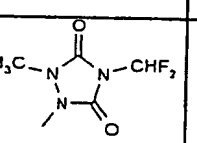
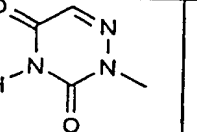
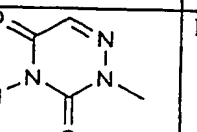
Bsp.-Nr.	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
IV-13	H	H		108
IV-14	CF <sub>3</sub>	H		154
IV-15	F	H		207
IV-16	F	H		115
IV-17	OCH <sub>3</sub>	H		221
IV-18	OCH <sub>3</sub>	H		153
IV-19	H	H		118

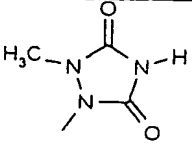
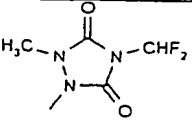
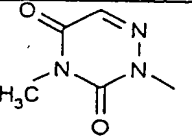
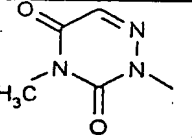
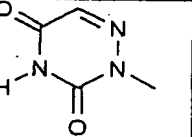
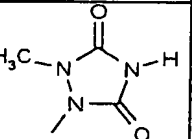
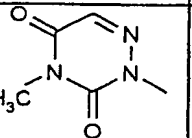
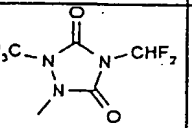
Bsp.-Nr.	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
IV-20	H	H		210
IV-21	H	H		136
IV-22	Cl	H		87
IV-23	H	H		213
IV-24	CF <sub>3</sub>	H		100
IV-25	CF <sub>3</sub>	H		115
IV-26	CF <sub>3</sub>	H		138
IV-27	H	H		98
IV-28	H	CH <sub>3</sub>		119

WO 98/39304

PCT/EP98/00972

- 83 -

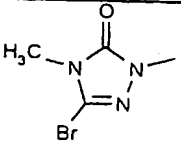
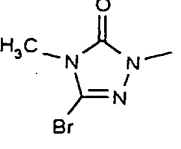
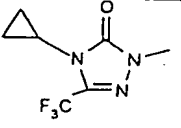
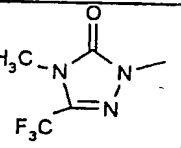
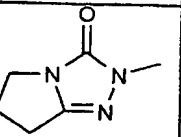
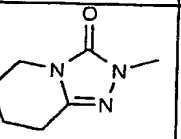
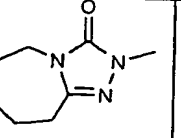
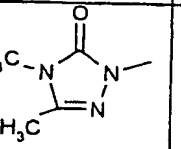
Bsp.-Nr.	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
IV-29	H	H		(amorph)
IV-30	CF <sub>3</sub>	H		206
IV-31	NO <sub>2</sub>	H		187
IV-32	CH <sub>3</sub>	H		222
IV-33	F	H		204
IV-34	F	H		(amorph)
IV-35	CF <sub>3</sub>	H		160
IV-36	F	H		196

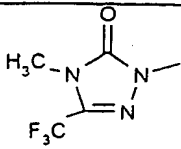
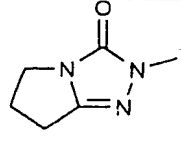
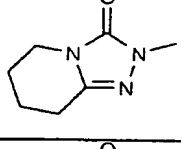
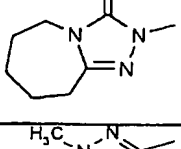
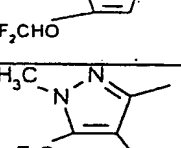
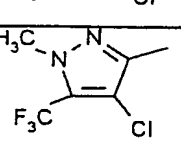
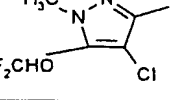
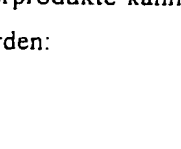
Bsp.-Nr.	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
IV-37	NH <sub>2</sub>	H		253
IV-38	CH <sub>3</sub>	H		107
IV-39	CF <sub>3</sub>	H		94
IV-40	F	H		(amorph)
IV-41	Cl	H		220
IV-42	Cl	H		224
IV-43	Cl	H		52
IV-44	Cl	H		134

WO 98/39304

PCT/EP98/00972

- 85 -

Bsp.-Nr.	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
IV-45	H	H		123
IV-46	H	CH <sub>3</sub>		124
IV-47	H	CH <sub>3</sub>		126
IV-48	H	CH <sub>3</sub>		107
IV-49	Cl	H		163
IV-50	Cl	H		157
IV-51	Cl	H		170
IV-52	Cl	H		171

Bsp.-Nr.	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
IV-53	Cl	H		94
IV-54	H	H		128
IV-55	H	H		130
IV-56	H	H		112
IV-57	Cl	H		40
IV-58	Cl	H		46
IV-59	H	H		(amorph)
IV-60	Cl	H		64

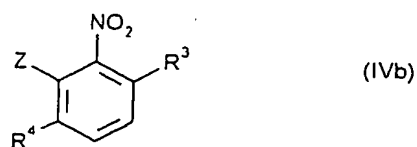
Ein weiterer Teil der erfindungsgemäßen Vorprodukte kann durch die nachstehende allgemeine Formel (IVb) wiedergegeben werden:



WO 98/39304

PCT/EP98/00972

- 87 -

**Tabelle 3b:** Beispiele für die Verbindungen der Formel (IVb)

Bsp.-Nr.	R <sup>3</sup>	R <sup>4</sup>	Z	Schmelzpunkt (°C)
IV-61	H	Cl		79
IV-62	H	Cl		162

5

Anwendungsbeispiele:Beispiel A

## 5 Pre-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15 Samen der Testpflanzen werden in normalem Boden ausgesät. Nach ca. 24 Stunden wird der Boden mit der Wirkstoffzubereitung so gespritzt, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 1 000 l Wasser/ha die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen ausgebracht werden.

20 Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

Es bedeuten:

25

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)  
100 % = totale Vernichtung

30 In diesem Test zeigen bei Aufwandmengen zwischen 250 und 750 g/ha beispielsweise die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiele 18, 19, 20, 23, 24 und 102 bei guter Verträglichkeit gegenüber Kulturpflanzen, wie z.B. Weizen (0 %), starke Wirkung gegen Unkräuter, wie Avena fatua (100 %), Cyperus (70-100 %), Setaria (90-

WO 98/39304

PCT/EP98/00972

- 89 -

100 %), Abutilon (70-100 %), Amaranthus (90-100 %), Galium (90-100 %), Sinapis (95-100 %), Lolium (100 %), Ipomoea (95-100 %), Matricaria (100 %) und Solanum (100 %).

**Beispiel B**

## Post-emergence-Test

- 5      Lösungsmittel:      5 Gewichtsteile Aceton  
Emulgator:      1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10      Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15      Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 - 15 cm haben so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Die Konzentration der Spritzbrühe wird so gewählt, daß in 1000 l Wasser/ha die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen ausgebracht werden.

20      Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

Es bedeuten:

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100 % = totale Vernichtung

25      In diesem Test zeigen bei Aufwandmengen von 15-750 g/ha beispielsweise die Verbindungen gemäß Herstellungsbeispiele 18, 19, 20, 23, 24 und 102 bei guter Verträglichkeit gegenüber Kulturpflanzen, wie z.B. Weizen (5-10 %), starke Wirkung gegen Unkräuter wie Avena fatua (80-95 %), Cyperus (90-95 %), Setaria (95-100 %), Abutilon (100 %), Amaranthus (95-100 %), Galium (100 %), Sinapis (100 %), Chenopodium (95-100 %), Matricaria (95-100 %), Polygonum (95-100 %) und Viola (90-100 %).

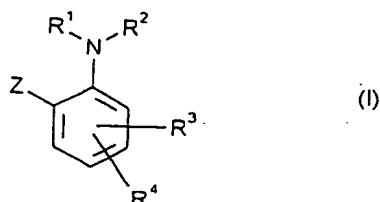
WO 98/39304

- 91 -

PCT/EP98/00972

Patentansprüche

1: Aromatische Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (I),



dadurch gekennzeichnet, daß

R¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Alkyl, Alkoxy, Alkylamino oder Di-alkylamino, oder für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,

-CQ¹-R⁵, -CQ¹-Q²-R⁶, -S(O)<sub>n</sub>-R⁷,

R² für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,

-CQ¹-R⁵, -CQ¹-Q²-R⁶, -S(O)<sub>n</sub>-R⁷,

R³ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thio-carbamoyl, Nitro, Halogen, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkoxycarbonyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkyl-sulfonyl, oder für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,

-SO₂-NH-R⁵, -NH-SO₂-R⁷, -N(SO₂-R⁷)₂, -N(SO₂-R⁷)(CO-R⁵),

R⁴ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Carboxy, Cyano, Carbamoyl, Thio-carbamoyl, Nitro, Halogen, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkoxy, Alkoxycarbonyl, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkyl-sulfonyl, oder für eine der nachstehenden Gruppierungen steht,

$-\text{SO}_2-\text{NH}-\text{R}^5$ ,  $-\text{NH}-\text{SO}_2-\text{R}^7$ ,  $-\text{N}(\text{SO}_2-\text{R}^7)_2$ ,  $-\text{N}(\text{SO}_2-\text{R}^7)(\text{CO}-\text{R}^5)$ ,

n für die Zahlen 0, 1 oder 2 steht,

Q<sup>1</sup> für O oder S steht und

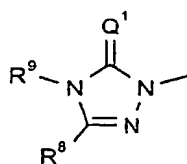
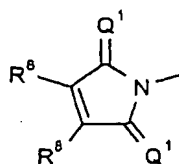
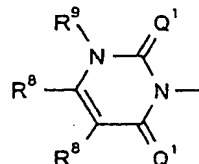
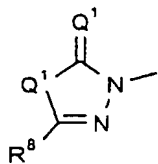
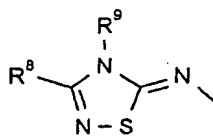
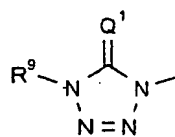
Q<sup>2</sup> für O, S, NH oder N-Alkyl steht,

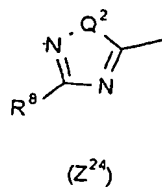
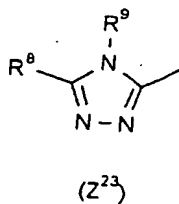
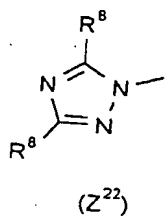
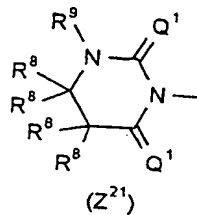
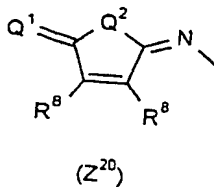
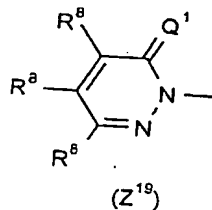
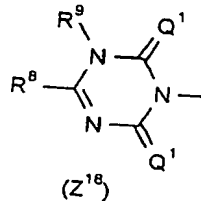
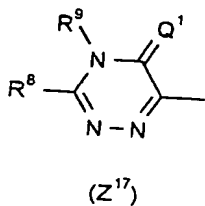
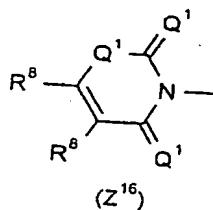
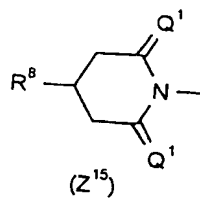
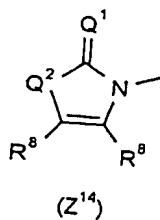
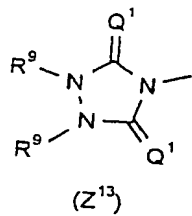
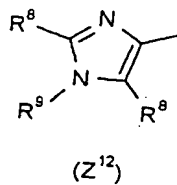
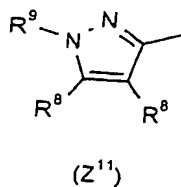
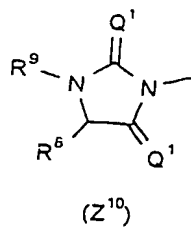
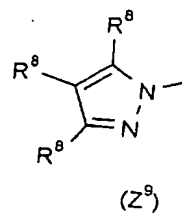
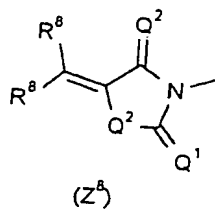
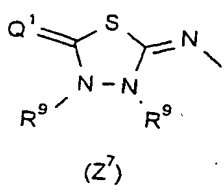
R<sup>5</sup> für Wasserstoff oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Aryl, Arylalkyl oder Heterocyclyl steht,

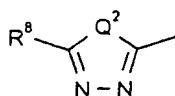
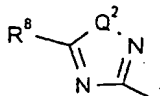
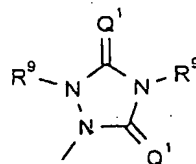
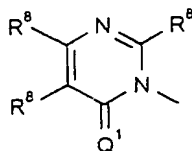
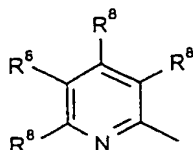
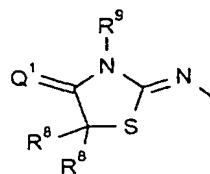
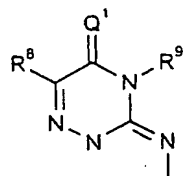
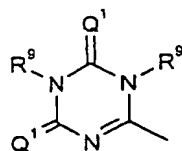
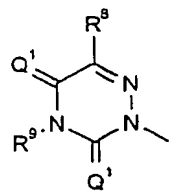
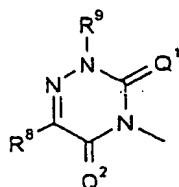
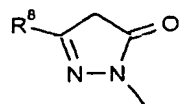
R<sup>6</sup> für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Aryl oder Arylalkyl steht,

R<sup>7</sup> für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Aryl, Arylalkyl oder Heterocyclyl steht, und

Z für eine der nachstehenden heterocyclischen Gruppierungen steht.

(Z<sup>1</sup>)(Z<sup>2</sup>)(Z<sup>3</sup>)(Z<sup>4</sup>)(Z<sup>5</sup>)(Z<sup>6</sup>)



(Z<sup>25</sup>)(Z<sup>26</sup>)(Z<sup>27</sup>)(Z<sup>28</sup>)(Z<sup>29</sup>)(Z<sup>30</sup>)(Z<sup>31</sup>)(Z<sup>32</sup>)(Z<sup>33</sup>)(Z<sup>34</sup>)(Z<sup>35</sup>)(Z<sup>36</sup>)

wobei jeweils

Q<sup>1</sup> und Q<sup>2</sup> die oben angegebene Bedeutung haben,

5

R<sup>8</sup> für Wasserstoff, Amino, Nitro, Cyano, Carboxy, Carbamoyl, Thiocarbamoyl, Halogen, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxy, Alkinylloxy, Alkylthio, Alkenylthio, Alkinylthio,



Alkylamino, Dialkylamino, Cycloalkyl oder Cycloalkylalkyl steht, und

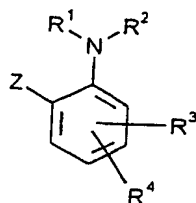
5  $R^9$  für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Cyano, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy-carbonyl, Cycloalkyl, Cycloalkylalkyl, Phenyl oder Phenylalkyl steht,

10 wobei gegebenenfalls zwei benachbarte Reste -  $R^8$  und  $R^8$ ,  $R^9$  und  $R^9$  oder  $R^8$  und  $R^9$  - zusammen für Alkandiyl (Alkylen) oder Oxaalkandiyl stehen, und

15 wobei die einzelnen Reste  $R^8$  und  $R^9$  - soweit sie mehr als einmal in der gleichen heterocyclischen Gruppierung stehen, die gleiche oder verschiedene Bedeutungen im Rahmen der obigen Definition haben können,

20 mit Ausnahme der Verbindungen N-[5-Chlor-2-(2,5-dihydro-3,4-dimethyl-2,5-dioxo-1H-pyrrol-1-yl)-phenyl]-acetamid, N-[2-(5-diethylamino-3-t-butyl-1H-1,2,4-triazol-1-yl)-5-trifluormethyl-phenyl]-2,2-dimethyl-propanamid und N-[2-(5-diethylamino-3-t-butyl-1H-1,2,4-triazol-1-yl)-5-trifluormethyl-phenyl]-acetamid.

25 2. Verfahren zur Herstellung der aromatischen Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (I),

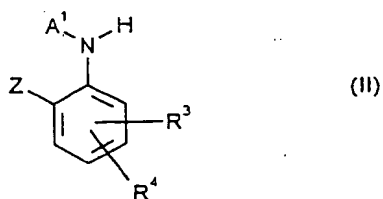


(I)

in welcher

$R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$ ,  $R^4$  und Z die in Anspruch 1 genannten Bedeutungen haben,

5 dadurch gekennzeichnet, daß man aromatische Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (II),



10 in welcher

$R^3$ ,  $R^4$  und Z die oben angegebene Bedeutung haben und

15  $A^1$  für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Alkyl, Alkoxy, Alkylamino oder Di-alkylamino steht,

mit elektrophilen Verbindungen der allgemeinen Formel (III),



20

in welcher

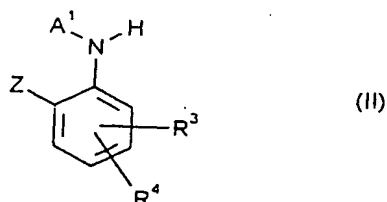
$R^2$  die oben angegebene Bedeutung hat und

25 X für Halogen steht,

umsetzt

und die auf diese Weise erhaltenen Verbindungen der allgemeinen Formel (I), gegebenenfalls nach üblichen Methoden, in andere Verbindungen der allgemeinen Formel (I) gemäß der obigen Definition umwandelt.

- 5      3. Aromatische Aminoverbindungen der allgemeinen Formel (II),

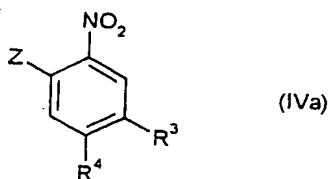


dadurch gekennzeichnet, daß

10      R³, R⁴ und Z die in Anspruch 1 genannten Bedeutungen haben und

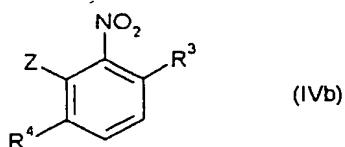
A¹ für Wasserstoff, Hydroxy, Amino, Alkyl, Alkoxy, Alkylamino oder Dialkylamino steht.

- 15      4. Aromatische Nitroverbindungen der allgemeinen Formel (IVa),



20      dadurch gekennzeichnet, daß R³, R⁴ und Z die in Anspruch 1 genannten Bedeutungen haben.

5. Aromatische Nitroverbindungen der allgemeinen Formel (IVb),



dadurch gekennzeichnet, daß  $R^3$ ,  $R^4$  und Z die in Anspruch 1 genannten Bedeutungen haben.

- 5
6. Herbizide Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einer aromatischen Aminoverbindung der Formel (I) gemäß dem Anspruch 1.
- 10 7. Verfahren zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen, dadurch gekennzeichnet, daß man aromatische Aminoverbindungen der Formel (I) gemäß dem Anspruch 1 auf unerwünschte Pflanzen und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
- 15 8. Verwendung von aromatischen Aminoverbindungen der Formel (I) gemäß dem Anspruch 1 zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen.
- 20 9. Verfahren zur Herstellung von herbiziden Mitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man aromatische Aminoverbindungen der Formel (I) gemäß dem Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Substanzen vermischt.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP 98/00972

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC<sup>6</sup>: C07D 239/54 A01N 43/54 C07D 249/12 C07D 249/16  
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC<sup>6</sup>: C07D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 06 345 743 A (SANKYO CO LTD.), 20 December 1994 (20.12.94), compare to Z=Z23 see the whole document	1-3, 6-9
X	EP 0 011 693 A (CIBA GEIGY AG), 11 June 1980 (11.06.80), under others Z=Z3, Z9, Z10, Z13 see the whole document	1-3, 6-9
X	WO 93 11097 A (DU PONT), 10 June 1993 (10.06.93), Z = Z29, see Q = Q1 and Y, X and R3 see the whole document	1-3, 6-9

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☒ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

17 June 1998

Date of mailing of the international search report

20 July 1998 (20.07.98)

Name and mailing address of the ISA/

EUROPEAN PATENT OFFICE

Facsimile No.

Authorized officer

Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

03-12-2003

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP 98/00972

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 96 18618 A (BAYER AG; BAYER AGROCHEM KK (JP); LINKER KARL HEINZ (DE); FINDEISE), 20 June 1996 (20.06.96), In particular formula I compare to Z=Z13 see the whole document	1-3,6-9
Y	US 5 136 868 A (THEODORIDIS GEORGE), 11 August 1992 (11.08.92), Z = Z6, see examples 202, 245, 277 see the whole document	1-3,6-9
Y	US 4 906 286 A (LYGA JOHN W), 6 March 1990 (06.03.90), see examples 92, 93 see the whole document	1-3,6-9
Y	WO 96 07323 A (BAYER AG; SANTEL HANS JOACHIM (DE); DOLLINGER MARKUS (DE); ANDREE), 14 March 1996 (14.03.96), Z = Z3, see the whole document	1-3,6-9
Y	EP 0 255 047 A (HOFFMANN LA ROCHE), 3 February 1988 (03.02.88), Z = Z3 see the whole document	1-3,6-9
Y	WO 94 04511 A (NISSAN CHEMICAL IND LTD; KAWAMURA YASUO (JP); SATOW JUN (JP); FUKU), 3 March 1994 (03.03.94), Z = Z3 see the whole document	1-3,6-9
Y	US 5 084 084 A (SATOW JUN ET AL), 28 January 1992 (28.01.92), Z = Z3 see the whole document	1-3,6-9
Y	US 4 249 934 A (JIKIHARA TETSUO ET AL), 10 February 1981 (10.02.81), Z = Z13 see the whole document	1-3,6-9
Y	WO 87 03782 A (FMC CORP), 2 July 1987 (02.07.87), Z = Z1, Z4 see the whole document	1-3,6-9
Y	US 4 213 773 A (WOLF ANTHONY D), 22 July 1980 (22.07.80), Z = Z1, Z4 see the whole document	1-3,6-9

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

03-12-2003

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP 98/00972

C (Continuation): DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 96 16043 A (BAYER AG; DREWES MARK WILHELM (DE); ANDREE ROLAND (DE); DOLLINGER), 30 May 1996 (30.05.96), Z = Z21 see the whole document	1-3,6-9
Y	EP 0 558 999 A (BAYER AG), 8 September 1993 (08.09.93), Z = Z9 see the whole document	1-3,6-9
Y	WO 97 05120 A (SUMITOMO CHEMICAL CO; OSHUMI TADASHI (JP); MATSUNAGA REI (JP)), 13 February 1997 (13.02.97), see the whole document	1-3,6-9
Y	US 5 108 486 A (KONDO KIYOSHI ET AL), 28 April 1992 (28.04.92), cited in the application see the whole document	1-3,6-9
Y	WO 94 14817 A (DU PONT; KILAMA JOHN JOLLY (US)), 7 July 1994 (07.07.94), see the whole document	1-3,6-9
X	US 3 922 162 A (KRENZER JOHN), 25 November 1975 (25.11.75), see the whole document	4,5

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP 98/00972

## Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☒ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:  
  
See supplemental sheet ADDITIONAL MATTER PCT/ISA/210
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

## Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

Form PCT/ISA/210 (continuation of first sheet (1)) (July 1992)

03-12-200



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP 98/00972

The search had to be restricted for economic reasons due to the large number of compounds which are defined theoretically in the independent claims. The search was limited to substances which were backed up by biological data and/or to the compounds to which specific claim is laid, in addition to the underlying idea of the present application (see Guidelines, Chapter III, paragraph 2.3). The search for intermediate products to which claim is laid (Claims 3-5) is also incomplete owing to partially overlapping chemical formulae for the end products to which claim is laid.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 98/00972

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 6345743 A	20-12-1994	NONE	
EP 0011693 A	11-06-1980	NONE	
WO 9311097 A	10-06-1993	AT 138365 T AU 3226993 A CN 1072562 A DE 69211015 D DE 69211015 T EP 0619804 A MX 9206852 A ZA 9209220 A	15-06-1996 28-06-1993 02-06-1993 27-06-1996 09-01-1997 19-10-1994 01-05-1993 27-05-1994
WO 9618618 A	20-06-1996	DE 19531152 A AU 4340296 A CA 2207628 A EP 0797573 A	20-06-1996 03-07-1996 20-06-1996 01-10-1997
US 5136868 A	11-08-1992	AU 558748 B AU 3675084 A BR 8407159 A CA 1243024 A DK 302585 A DK 472686 A EP 0161304 A JP 2033710 B JP 61500069 T OA 8055 A WO 8501939 A US 4868321 A	05-02-1987 22-05-1985 08-10-1985 11-10-1988 03-09-1985 03-10-1986 21-11-1985 30-07-1990 16-01-1986 31-03-1987 09-05-1985 19-09-1989
US 4906286 A	06-03-1990	AU 1921888 A AU 578708 B AU 4434285 A CA 1229606 A EP 0185731 A JP 61501032 T US 4906287 A WO 8600072 A US 4766233 A	24-11-1988 03-11-1988 10-01-1986 24-11-1987 02-07-1986 22-05-1986 06-03-1990 03-01-1986 23-08-1988

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 98/00972

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9607323	A	14-03-1996	DE 4431219 A AU 3471595 A EP 0778732 A JP 10505072 T	07-03-1996 27-03-1996 18-06-1997 19-05-1998
EP 0255047	A	03-02-1988	AU 604250 B AU 7637187 A CA 1286662 A DK 366887 A US 4859229 A JP 63041466 A ZA 8705466 A	13-12-1990 11-02-1988 23-07-1991 13-05-1988 22-08-1989 22-02-1988 02-02-1988
WO 9404511	A	03-03-1994	AU 2448292 A	15-03-1994
US 5084084	A	28-01-1992	AT 143017 T AU 627906 B AU 5884990 A CA 2021005 A DE 69028582 D DE 69028582 T DK 408382 T EP 0408382 A ES 2091799 T US 5127935 A US 5154755 A JP 3204865 A AU 643479 B AU 6858991 A CA 2033929 A CN 1061966 A,B EP 0489480 A HU 214084 B LV 11176 A LV 11176 B RU 2010524 C RU 2040523 C	15-10-1996 03-09-1992 17-01-1991 15-01-1991 24-10-1996 10-04-1997 17-02-1997 16-01-1991 16-11-1996 07-07-1992 13-10-1992 06-09-1991 18-11-1993 18-06-1992 06-06-1992 17-06-1992 10-06-1992 29-12-1997 20-04-1996 20-08-1996 15-04-1994 25-07-1995
US 4249934	A	10-02-1981	JP 51080887 A JP 51086489 A	15-07-1976 29-07-1976

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 98/00972

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4249934 A		JP 1127794 C	14-12-1982
		JP 50160429 A	25-12-1975
		JP 57014644 B	25-03-1982
		JP 51032586 A	19-03-1976
		JP 51032584 A	19-03-1976
		JP 1133134 C	27-01-1983
		JP 51035435 A	25-03-1976
		JP 57021163 B	06-05-1982
		JP 1127798 C	14-12-1982
		JP 51041436 A	07-04-1976
		JP 57014645 B	25-03-1982
		JP 51057829 A	20-05-1976
		JP 51075090 A	29-06-1976
		CA 1047043 A	23-01-1979
		CH 614212 A	15-11-1979
		DE 2526358 A	08-01-1976
		GB 1492457 A	23-11-1977
		NL 7507233 A	23-12-1975
		FR 2275465 A	16-01-1976
WO 8703782 A	02-07-1987	BR 8607229 A	06-12-1988
		CA 1291753 A	05-11-1991
		CN 1021821 B	18-08-1993
		CN 1041513 A	25-04-1990
		CN 1038570 A,B	10-01-1990
		CS 8609601 A	14-11-1989
		DE 3688911 A	23-09-1993
		DE 3688911 T	09-12-1993
		DK 431187 A	19-08-1987
		EP 0294375 A	14-12-1988
		JP 5033951 B	20-05-1993
		JP 62502896 T	19-11-1987
		MX 4714 A	01-12-1993
		US 5294595 A	15-03-1994
US 4213773 A	22-07-1980	US 5174809 A	29-12-1992
		US 5214154 A	25-05-1993
		US 4818275 A	04-04-1989
		AR 223141 A	31-07-1981
		AU 3233478 A	19-07-1979

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 98/00972

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4213773 A		BR 7800182 A	22-08-1978
		CA 1088060 A	21-10-1980
		CS 207497 B	31-07-1981
		DE 2801429 A	20-07-1978
		DK 538477 A	14-07-1978
		FR 2384769 A	20-10-1978
		GB 1561376 A	20-02-1980
		JP 53105494 A	13-09-1978
		LU 78858 A	09-04-1979
		NL 7800380 A	17-07-1978
WO 9616043 A	30-05-1996	DE 4440914 A	23-05-1996
		AU 3981795 A	17-06-1996
EP 0558999 A	08-09-1993	DE 4206531 A	09-09-1993
		AU 3384593 A	09-09-1993
		JP 6065206 A	08-03-1994
WO 9705120 A	13-02-1997	JP 9095486 A	08-04-1997
		AU 6531196 A	26-02-1997
US 5108486 A	28-04-1992	US 5310724 A	10-05-1994
WO 9414817 A	07-07-1994	AU 674912 B	16-01-1997
		AU 5733894 A	19-07-1994
		CA 2151816 A	07-07-1994
		EP 0674644 A	04-10-1995
		US 5643855 A	01-07-1997
US 3922162 A	25-11-1975	US 3890342 A	17-06-1975
		AR 219271 A	15-08-1980
		AT 341270 B	25-01-1978
		AU 7897275 A	16-09-1976
		CA 1032169 A	30-05-1978
		CH 615671 A	15-02-1980
		DE 2510573 A	02-10-1975
		DK 117575 A	29-09-1975
		EG 11654 A	29-03-1978
		FR 2289501 A	28-05-1976
		GB 1447471 A	25-08-1976

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 98/00972

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 3922162 A		IN 140251 A	02-10-1976
		JP 50129746 A	14-10-1975
		NL 7503315 A	30-09-1975
		SE 406084 B	22-01-1979
		SE 7503545 A	29-09-1975
		ZA 7500954 A	28-01-1976

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/00972

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 6 C07D239/54 A01N43/54 C07D249/12 C07D249/16

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 C07D

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	JP 06 345 743 A (SANKYO CO LTD.) 20. Dezember 1994 * vgl. mit Z=Z23 * siehe das ganze Dokument	1-3, 6-9
X	EP 0 011 693 A (CIBA GEIGY AG) 11. Juni 1980 * unter anderem Z=Z3, Z9, Z10, Z13 * siehe das ganze Dokument	1-3, 6-9
X	WO 93 11097 A (DU PONT) 10. Juni 1993 * Z = Z29, siehe Q=Q1 und Y, X und R3 * siehe das ganze Dokument	1-3, 6-9
	---	
	-/--	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Aussetzung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"A" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

17. Juni 1998

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

20. 07. 98

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Stellmach, J

Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (Juli 1992)

Seite 1 von 3

03-12-2003

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP 98/00972

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 96 18618 A (BAYER AG ;BAYER AGROCHEM KK (JP); LINKER KARL HEINZ (DE); FINDEISE) 20.Juni 1996 * insbesondere Formel I im Vergleich mit Z=Z13 * siehe das ganze Dokument ---	1-3,6-9
Y	US 5 136 868 A (THEODORIDIS GEORGE) 11.August 1992 * Z = Z6, siehe Beispiele 202, 245, 277 * siehe das ganze Dokument ---	1-3,6-9
Y	US 4 906 286 A (LYGA JOHN W) 6.März 1990 * Z=Z33, siehe Beispiele 92, 93 * siehe das ganze Dokument ---	1-3,6-9
Y	WO 96 07323 A (BAYER AG ;SANTEL HANS JOACHIM (DE); DOLLINGER MARKUS (DE); ANDREE) 14.März 1996 * Z = Z3 * siehe das ganze Dokument ---	1-3,6-9
Y	EP 0 255 047 A (HOFFMANN LA ROCHE) 3.Februar 1988 * Z = Z3 * siehe das ganze Dokument ---	1-3,6-9
Y	WO 94 04511 A (NISSAN CHEMICAL IND LTD ;KAWAMURA YASUO (JP); SATOW JUN (JP); FUKU) 3.März 1994 * Z = Z3 * siehe das ganze Dokument ---	1-3,6-9
Y	US 5 084 084 A (SATOW JUN ET AL) 28.Januar 1992 * Z = Z3 * siehe das ganze Dokument ---	1-3,6-9
Y	US 4 249 934 A (JIKIHARA TETSUO ET AL) 10.Februar 1981 * Z = Z13 * siehe das ganze Dokument ---	1-3,6-9
Y	WO 87 03782 A (FMC CORP) 2.Juli 1987 * Z = Z1, Z4 * siehe das ganze Dokument ---	1-3,6-9
Y	US 4 213 773 A (WOLF ANTHONY D) 22.Juli 1980 * Z = Z1, Z4 * siehe das ganze Dokument ---	1-3,6-9
	---	
	---	

1

Formblatt PCT/ISA/210 (Fortsetzung von Blatt 2) (Juli 1992)

Seite 2 von 3

03-12-2003



# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/00972

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	WO 96 16043 A (BAYER AG ;DREWES MARK WILHELM (DE); ANDREE ROLAND (DE); DOLLINGER) 30.Mai 1996 * Z = Z21 * siehe das ganze Dokument ---	1-3,6-9
Y	EP 0 558 999 A (BAYER AG) 8.September 1993 * Z =Z9 * siehe das ganze Dokument ---	1-3,6-9
Y	WO 97 05120 A (SUMITOMO CHEMICAL CO ;OHSUMI TADASHI (JP); MATSUNAGA REI (JP)) 13.Februar 1997 siehe das ganze Dokument ---	1-3,6-9
Y	US 5 108 486 A (KONDO KIYOSHI ET AL) 28.April 1992 in der Anmeldung erwähnt siehe das ganze Dokument ---	1-3,6-9
Y	WO 94 14817 A (DU PONT ;KILAMA JOHN JOLLY (US)) 7.Juli 1994 siehe das ganze Dokument ---	1-3,6-9
X	US 3 922 162 A (KRENZER JOHN) 25.November 1975 siehe das ganze Dokument -----	4,5

Formblatt PCT/ISA/210 (Fortsetzung von Blatt 2) (Juli 1992)

Seite 3 von 3

03-12-2003

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP 98/00972

## Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 1 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1. ☐ Ansprüche Nr. \_\_\_\_\_  
weil Sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich \_\_\_\_\_
2. ☒ Ansprüche Nr. \_\_\_\_\_  
weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich  
siehe Zusatzblatt WEITERE ANGABEN PCT/ISA/210
3. ☐ Ansprüche Nr. \_\_\_\_\_  
weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

## Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

1. ☐ Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche der internationalen Anmeldung.
2. ☐ Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchegebühr gerechtfertigt hätte, hat die Internationale Recherchenbehörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
3. ☐ Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche der internationalen Anmeldung, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr. \_\_\_\_\_
4. ☐ Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchegebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt: \_\_\_\_\_

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

- ☐ Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.  
☐ Die Zahlung zusätzlicher Gebühren erfolgte ohne Widerspruch.

Formblatt PCT/ISA/210 (Fortsetzung von Blatt 1 (1))(Juli 1992)

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 98/00972

WEITERE ANGABEN

PCT/ISA/ 210

Wegen der großen Zahl der Verbindungen, die in den unabhängigen Ansprüchen theoretisch definiert werden, mußte die Recherche aus ökonomischen Gründen eingeschränkt werden. Die Recherche beschränkte sich auf die durch biologische Daten gestützte Substanzen und/oder auf die spezifisch beanspruchte Verbindungen, sowie auf den unterliegenden Gedanken der vorliegenden Anmeldung (siehe Richtlinien, Kapitel III, Par. 2.3 ). Wegen der teilweise überlappenden chemischen Formeln für die beanspruchten Endprodukte ist die Recherche für die beanspruchten Zwischenprodukte ( Ansprüche 3-5 ) ebenfalls unvollständig.

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/00972

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
JP 6345743 A	20-12-1994	KEINE	
EP 0011693 A	11-06-1980	KEINE	
WO 9311097 A	10-06-1993	AT 138365 T	15-06-1996
		AU 3226993 A	28-06-1993
		CN 1072562 A	02-06-1993
		DE 69211015 D	27-06-1996
		DE 69211015 T	09-01-1997
		EP 0619804 A	19-10-1994
		MX 9206852 A	01-05-1993
		ZA 9209220 A	27-05-1994
WO 9618618 A	20-06-1996	DE 19531152 A	20-06-1996
		AU 4340296 A	03-07-1996
		CA 2207628 A	20-06-1996
		EP 0797573 A	01-10-1997
US 5136868 A	11-08-1992	AU 558748 B	05-02-1987
		AU 3675084 A	22-05-1985
		BR 8407159 A	08-10-1985
		CA 1243024 A	11-10-1988
		DK 302585 A	03-09-1985
		DK 472686 A	03-10-1986
		EP 0161304 A	21-11-1985
		JP 2033710 B	30-07-1990
		JP 61500069 T	16-01-1986
		OA 8055 A	31-03-1987
		WO 8501939 A	09-05-1985
		US 4868321 A	19-09-1989
US 4906286 A	06-03-1990	AU 1921888 A	24-11-1988
		AU 578708 B	03-11-1988
		AU 4434285 A	10-01-1986
		CA 1229606 A	24-11-1987
		EP 0185731 A	02-07-1986
		JP 61501032 T	22-05-1986
		US 4906287 A	06-03-1990
		WO 8600072 A	03-01-1986
		US 4766233 A	23-08-1988

Formblatt PCT/SA/210 (Anhang Patentfamilie) (Juli 1992)

03-12-2003

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/00972

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 9607323 A	14-03-1996	DE 4431219 A AU 3471595 A EP 0778732 A JP 10505072 T	07-03-1996 27-03-1996 18-06-1997 19-05-1998
EP 0255047 A	03-02-1988	AU 604250 B AU 7637187 A CA 1286662 A DK 366887 A US 4859229 A JP 63041466 A ZA 8705466 A	13-12-1990 11-02-1988 23-07-1991 13-05-1988 22-08-1989 22-02-1988 02-02-1988
WO 9404511 A	03-03-1994	AU 2448292 A	15-03-1994
US 5084084 A	28-01-1992	AT 143017 T AU 627906 B AU 5884990 A CA 2021005 A DE 69028582 D DE 69028582 T DK 408382 T EP 0408382 A ES 2091799 T US 5127935 A US 5154755 A JP 3204865 A AU 643479 B AU 6858991 A CA 2033929 A CN 1061966 A,B EP 0489480 A HU 214084 B LV 11176 A LV 11176 B RU 2010524 C RU 2040523 C	15-10-1996 03-09-1992 17-01-1991 15-01-1991 24-10-1996 10-04-1997 17-02-1997 16-01-1991 16-11-1996 07-07-1992 13-10-1992 06-09-1991 18-11-1993 18-06-1992 06-06-1992 17-06-1992 10-06-1992 29-12-1997 20-04-1996 20-08-1996 15-04-1994 25-07-1995
US 4249934 A	10-02-1981	JP 51080887 A JP 51086489 A	15-07-1976 29-07-1976

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/00972

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 4249934 A		JP 1127794 C	14-12-1982
		JP 50160429 A	25-12-1975
		JP 57014644 B	25-03-1982
		JP 51032586 A	19-03-1976
		JP 51032584 A	19-03-1976
		JP 1133134 C	27-01-1983
		JP 51035435 A	25-03-1976
		JP 57021163 B	06-05-1982
		JP 1127798 C	14-12-1982
		JP 51041436 A	07-04-1976
		JP 57014645 B	25-03-1982
		JP 51057829 A	20-05-1976
		JP 51075090 A	29-06-1976
		CA 1047043 A	23-01-1979
		CH 614212 A	15-11-1979
		DE 2526358 A	08-01-1976
		GB 1492457 A	23-11-1977
		NL 7507233 A	23-12-1975
		FR 2275465 A	16-01-1976
WO 8703782 A	02-07-1987	BR 8607229 A	06-12-1988
		CA 1291753 A	05-11-1991
		CN 1021821 B	18-08-1993
		CN 1041513 A	25-04-1990
		CN 1038570 A, B	10-01-1990
		CS 8609601 A	14-11-1989
		DE 3688911 A	23-09-1993
		DE 3688911 T	09-12-1993
		DK 431187 A	19-08-1987
		EP 0294375 A	14-12-1988
		JP 5033951 B	20-05-1993
		JP 62502896 T	19-11-1987
		MX 4714 A	01-12-1993
		US 5294595 A	15-03-1994
		US 5174809 A	29-12-1992
		US 5214154 A	25-05-1993
		US 4818275 A	04-04-1989
US 4213773 A	22-07-1980	AR 223141 A	31-07-1981
		AU 3233478 A	19-07-1979

Formblatt PCT/ISA/210 (Anhang Patentfamilie) (Juli 1992)

03-12-2003

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/00972

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 4213773 A		BR 7800182 A	22-08-1978
		CA 1088060 A	21-10-1980
		CS 207497 B	31-07-1981
		DE 2801429 A	20-07-1978
		DK 538477 A	14-07-1978
		FR 2384769 A	20-10-1978
		GB 1561376 A	20-02-1980
		JP 53105494 A	13-09-1978
		LU 78858 A	09-04-1979
		NL 7800380 A	17-07-1978
WO 9616043 A	30-05-1996	DE 4440914 A	23-05-1996
		AU 3981795 A	17-06-1996
EP 0558999 A	08-09-1993	DE 4206531 A	09-09-1993
		AU 3384593 A	09-09-1993
		JP 6065206 A	08-03-1994
WO 9705120 A	13-02-1997	JP 9095486 A	08-04-1997
		AU 6531196 A	26-02-1997
US 5108486 A	28-04-1992	US 5310724 A	10-05-1994
WO 9414817 A	07-07-1994	AU 674912 B	16-01-1997
		AU 5733894 A	19-07-1994
		CA 2151816 A	07-07-1994
		EP 0674644 A	04-10-1995
		US 5643855 A	01-07-1997
US 3922162 A	25-11-1975	US 3890342 A	17-06-1975
		AR 219271 A	15-08-1980
		AT 341270 B	25-01-1978
		AU 7897275 A	16-09-1976
		CA 1032169 A	30-05-1978
		CH 615671 A	15-02-1980
		DE 2510573 A	02-10-1975
		DK 117575 A	29-09-1975
		EG 11654 A	29-03-1978
		FR 2289501 A	28-05-1976
		GB 1447471 A	25-08-1976

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**  
Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/00972

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 3922162     A		IN     140251 A	02-10-1976
		JP     50129746 A	14-10-1975
		NL     7503315 A	30-09-1975
		SE     406084 B	22-01-1979
		SE     7503545 A	29-09-1975
		ZA     7500954 A	28-01-1976
-----			

Formblatt PCT/ISA/210 (Anhang Patentfamilie) (Juli 1992)

03-12-2003



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☒ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☒ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**